HELVETICA PHYSICA ACTA

SOCIETATIS PHYSICAE HELVETICAE
COMMENTARIA PUBLICA

VOLUMEN XXXI

BASILEAE · IN AEDIBUS BIRKHAEUSER
MCMLVIII

Copyright 1958 by: Schweizerische Physikalische Gesellschaft
Société Suisse de Physique
Società Fisica Svizzera

Publiziert mit Unterstützung des Schweiz. Nationalfonds
zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung

Druck von Birkhäuser AG., Basel

Beziehungen zwischen den Koeffizienten der galvano- und thermomagnetischen Transversaleffekte in Ferromagneten

von **G. Busch, F. Hulliger** und **R. Jaggi**

Laboratorium für Festkörperphysik ETH., Zürich

(9. IX. 1957)

Zusammenfassung. In Analogie zum ferromagnetischen Hall-Effekt werden für die übrigen Transversaleffekte zweigliedrige Formeln aufgestellt und die dadurch definierten Feldparameter α für Nickel aus Literaturdaten berechnet und miteinander verglichen. Die α-Werte stimmen zumindest grössenordnungsmässig überein. Die Bridgman-Beziehungen $S = \sigma R$ und $Q = \lambda P/T$ sind beim Eisen und beim Kobalt für die ausserordentlichen Koeffizienten erfüllt. Beim Nickel stimmt die Beziehung $S = \sigma R$ für die ausserordentlichen und die ordentlichen Koeffizienten innerhalb eines Faktors 2, wobei $R_1/S_1 \approx R_0/S_0$. Unter der Voraussetzung, dass die ordentlichen Koeffizienten durch die Elektronentheorie der Metalle erklärt werden, gilt die Beziehung $R_0 Q_0/S_0 P_0 \approx L$, welcher auch die experimentellen Werte für die ausserordentlichen Koeffizienten innerhalb der zu erwartenden Genauigkeit genügen. Dies deutet auf eine paarweise Gleichheit der Feldparameter $\alpha_R \approx \alpha_S$ und $\alpha_Q \approx \alpha_P$ hin.

In einem Leiter, der von einem elektrischen Strom bzw. einem Wärmestrom durchflossen wird, ruft ein zur Stromrichtung senkrechtes Magnetfeld einen transversalen Potential- und Temperaturgradienten hervor. Diese Effekte werden mit Hilfe der Koeffizienten R, P, S, Q folgendermassen ausgedrückt:

Hall-Effekt: $$E_y = R B_z j_x, \tag{1}$$

Ettingshausen-Effekt: $$\frac{\partial T}{\partial y} = - P B_z j_x, \tag{2}$$

Righi-Leduc-Effekt: $$\frac{\partial T}{\partial y} = S B_z \frac{\partial T}{\partial x}, \tag{3}$$

Ettingshausen-Nernst-Effekt: $$E_y = - Q B_z \frac{\partial T}{\partial x}. \tag{4}$$

j_x = Dichte des elektrischen Primärstroms,
$\frac{\partial T}{\partial x}$ = Primärer Temperaturgradient,
B_z = Magnetische Induktion,
E_y = Sekundäres elektrisches Feld,
$\frac{\partial T}{\partial y}$ = Sekundärer Temperaturgradient.

Die Transversaleffekte wurden früher häufig untersucht und Beziehungen zwischen den verschiedenen Koeffizienten aufgestellt. Eine grundlegende Arbeit stammt von SOMMERFELD und FRANK [S9]; darin werden auf Grund der Sommerfeldschen Elektronentheorie der Metalle quantitative Beziehungen hergeleitet. Eine Verallgemeinerung für ein Zweibändermodell findet sich bei SONDHEIMER [S10]. Mit dem Einbandmodell erhält man im Giorgi-System für die Koeffizienten (siehe z. B. WILSON [W2])

$$R_{is} = -\frac{1}{en}; \; P_{ad} = \frac{T}{n\tau}\frac{\partial\tau}{\partial\zeta}; \; S_{ad} = -\frac{e\tau}{m}; \; Q_{is} = \frac{\pi^2 k^2 T}{3m}\frac{\partial\tau}{\partial\zeta}. \tag{5}$$

$_{is}$ = isotherm: $\partial T/\partial y = 0$, $_{ad}$ = adiabatisch: $w_y = 0$,
w = Wärmestromdichte, k = Boltzmannsche Konstante,
e, m, n, τ und ζ = Betrag der Ladung, effektive Masse, Konzentration, Relaxationszeit und Fermigrenzenergie der Leitungselektronen.

Das Einbandmodell liefert die von BRIDGMAN [B2] phänomenologisch abgeleiteten Beziehungen zwischen den Koeffizienten

$$S = \sigma R \tag{6}$$

und

$$Q = \frac{\lambda}{T} P. \tag{7}$$

σ = Elektrische Leitfähigkeit,
λ = Wärmeleitfähigkeit.

Aus (6) und (7) folgt weiter

$$\frac{RQ}{PS} = \frac{\lambda}{\sigma T}, \tag{8}$$

wodurch die Koeffizienten mit dem Wiedemann-Franz-Lorenzschen Gesetz

$$\frac{\lambda}{\sigma T} = L = \frac{\pi^2}{3}\left(\frac{k}{e}\right)^2 \tag{9}$$

verknüpft sind.

Bei den gewöhnlichen Metallen sind diese Beziehungen bis auf einen Faktor 2 bis 3 erfüllt (siehe z. B. BORELIUS [B 1] und MEISSNER [M 1]). Für Halbleiter wurden die Effekte erstmals von BRONSTEIN [B 3] ausführlich theoretisch behandelt. PUTLEY [P 2] berechnete die Koeffizienten für n- und p-Typ-Halbleiter sowie für Halbleiter mit gemischter Leitung und verifizierte die Formeln im Fall des PbSe und PbTe. Die Bridgman-Beziehung (7) bleibt auch für Halbleiter gültig, währenddem (6) z. B. für einen n-Typ-Halbleiter übergeht in

$$S \approx \frac{\lambda_E}{\lambda_E + \lambda_G}\sigma R. \tag{6a}$$

λ_E = Elektronenanteil der Wärmeleitfähigkeit,
λ_G = Gitteranteil der Wärmeleitfähigkeit.

Einen Spezialfall bilden die Ferromagnete, da bei diesen die Effekte nicht proportional zur magnetischen Induktion B sind. Fig. 1 zeigt als

Beispiel den Verlauf der Hall-Feldstärke als Funktion der Induktion B. Die Kurve besteht im wesentlichen aus zwei Geradenstücken. Nach dem Vorschlag von PUGH [P 1] benützt man deshalb zur Beschreibung des Hall-Effekts in Ferromagneten den zweigliedrigen Ausdruck

$$\frac{E_y}{j_x} = \varrho_H = R_0 \mu_0 H_z + R_1 M_z = R_0 B_z + R_s M_z = R_0 (\mu_0 H_z + \alpha_R M_z). \quad (10)$$

H_z = Magnetische Feldstärke,
M_z = Magnetisierung,
ϱ_H = Résistivité de Hall nach PERRIER,
R_0 = Ordentlicher Hall-Koeffizient,
R_1 = Ausserordentlicher Hall-Koeffizient,
$R_s = R_1 - R_0$,
$\alpha_R = R_1/R_0$ = Feldparameter.

Zum ordentlichen, durch das innere Magnetfeld erzeugten Hall-Effekt $R_0 B$ muss ein durch die spontane Magnetisierung hervorgerufener Ef-

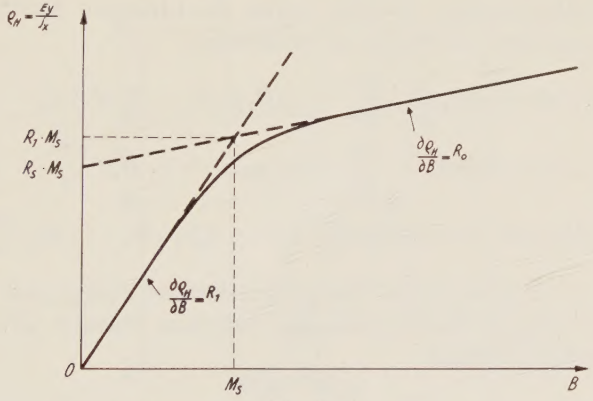


Fig. 1.
Hall-Effekt in Ferromagneten.

fekt $R_s M$ addiert werden. Die Koeffizienten lassen sich aus der Steigung der Geraden

$$\frac{\partial \varrho_H}{\partial B} = R_0 + (R_1 - R_0) \frac{\partial M}{\partial B} \quad (11)$$

bestimmen. Die Tangente im Ursprung ergibt R_1 (da $B \approx M$). Für Temperaturen genügend unterhalb des Curiepunktes erhält man R_0 aus der Neigung des zweiten Geradenstückes (da $M = M_s = \text{const}$, M_s = Sättigungsmagnetisierung). Dessen Schnitt mit der Ordinatenachse bestimmt die Grösse $R_s M_s$.

Der Koeffizient R_0 kann durch die gewöhnliche Elektronentheorie erklärt werden (bei Vernachlässigung des Einflusses der spontanen Magnetisierung auf die Zahl der Leitungs-Elektronen und deren effektive Masse). Das Experiment ergibt einen im wesentlichen temperaturunabhängigen

Wert, wenn man bei seiner Bestimmung die Feldabhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung in der Nähe des Curie-Punktes berücksichtigt [R 1].

Der ausserordentliche Effekt $R_s M$ wird auf die Kopplung zwischen Spin und Bahnmoment der polarisierten Leitungselektronen zurückgeführt [S 1, K 1]. Es handelt sich danach nicht um einen Hall-Effekt im üblichen Sinn, da er nicht auf der Wirkung des mittleren Magnetfeldes beruht. Nach KARPLUS und LUTTINGER [K 1] gilt

$$R_1 \approx \frac{r}{\sigma^2}. \tag{12}$$

r = praktisch T-unabhängiger und auf Verunreinigungen unempfindlicher Faktor.

Experimentell findet man für den Exponenten von σ Werte zwischen 1 und 2 [K 2, S 4, J 5].

Die derjenigen des Hall-Effektes analoge Feldabhängigkeit der übrigen Transversaleffekte legte es nahe, deren Koeffizienten ebenfalls durch einen zweigliedrigen Ausdruck zu beschreiben:

$$\text{Ettingshausen-Effekt:} \quad \frac{\partial T}{\partial y} = -(P_0 \mu_0 H_z + P_1 M_z)\, j_x, \tag{13}$$

$$\text{Righi-Leduc-Effekt:} \quad \frac{\partial T}{\partial y} = (S_0 \mu_0 H_z + S_1 M_z)\, \frac{\partial T}{\partial x}, \tag{14}$$

$$\text{Ettingshausen-Nernst-Effekt:} \quad E_y = -(Q_0 \mu_0 H_z + Q_1 M_z)\, \frac{\partial T}{\partial x}. \tag{15}$$

Dadurch ist für jeden Effekt ein entsprechender Feldparameter α definiert. Zu den für Nicht-Ferromagnete üblichen Formeln gelangt man, wenn man den Ausdruck

$$\mu_0 H + \alpha M$$

formal als „effektives inneres Feld" bezeichnet. Das hat natürlich nur einen Sinn, wenn dieser Ausdruck für alle Effekte gleich ist, d. h. wenn der Mechanismus derselbe ist.

Der zweigliedrige Ausdruck (15) für den Ettingshausen-Nernst-Effekt wurde schon von MEYER [M 2] auf Grund der Messungen von GENKIN und PRIPOROWA [G 1] vorgeschlagen. Mit dem von KARPLUS und LUTTINGER [K 1] übernommenen Ansatz erhielt er für den ausserordentlichen Koeffizienten im Einbandmodell

$$|Q_1| = \frac{e^3 r \lambda}{\sigma^3} \cdot \frac{n}{m} \left(\frac{5}{4} \frac{\tau}{\zeta} + \frac{\partial \tau}{\partial \zeta} \right) \tag{16}$$

und unter der Annahme ζ proportional τ für den Feldparameter

$$\alpha_Q \approx 2\, \alpha_R. \tag{16a}$$

Wir führten zusätzlich die Gleichungen (13) und (14) ein und berechneten auf der Grundlage von Gl. (10), (13), (14) und (15) aus den vorliegenden Messungen an ferromagnetischen Metallen soweit möglich die ordentlichen und ausserordentlichen Koeffizienten [J 2].

Es war von Interesse, die Feldparameter der verschiedenen Effekte miteinander zu vergleichen [B 4] und weiter zu überprüfen, welche Auswirkung die Formulierung (10), (13), (14), (15) auf die erwähnten Beziehungen (6) und (7) hat. Dabei ist allerdings zu bemerken, dass die Koeffizienten relativ stark von der chemischen Reinheit und der Vorbehandlung der

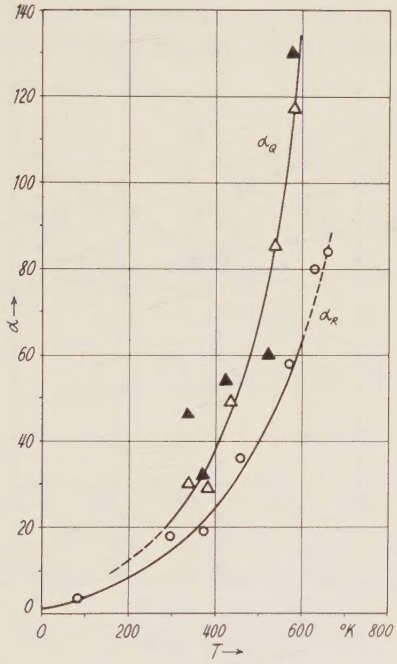


Fig. 2.

Feldparameter α_R und α_Q von Nickel als Funktion der Temperatur T.

○ α_R nach S 3 ⎫
△ α_Q nach S 4 ⎭ Nickel von Kahlbaum
▲ α_Q nach S 4, Nickel von Eimer und Amend

Proben abhängen. Ein strenger Vergleich wäre deshalb nur für Messungen aller Effekte an der gleichen Probe möglich. Nun sind aber brauchbare Messungen nur eines Effektes schon selten, und ausser den zahlreichen Hall-Effektsmessungen existieren nur wenige Messungen der Transversaleffekte über einen grösseren Feld- und Temperaturbereich. Die Zuverlässigkeit der Resultate wird ausserdem eingeschränkt durch

eine oft unexakte Messung der in der Probe herrschenden magnetischen Induktion B.

In Fig. 2 sind die α_R- und α_Q-Werte von Nickel als Funktion der Temperatur einander gegenübergestellt; es handelt sich um Auswertungen der Messungen von SMITH [S 3, S 4] an zwei Proben.

Fig. 3 zeigt die Parameter α_R, α_S und α_Q für den Hall-, Righi-Leduc- und Ettingshausen-Nernst-Effekt an derselben Nickelprobe nach UNWIN

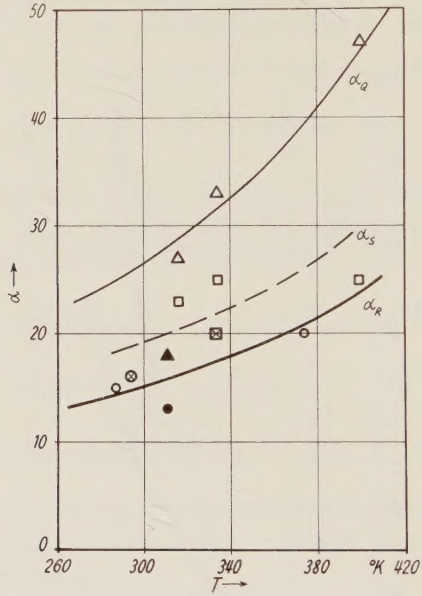


Fig. 3.

Feldparameter α_R, α_S und α_Q von Nickel als Funktion der Temperatur T.

○	α_R	nach U 1
□	α_S	nach U 1
△	α_Q	nach U 1
●	α_R	nach M 3
▲	α_Q	nach M 3
⊗	α_R	nach H 1
⊠	α_S	nach S 6

[U 1] (Bestimmung der α aus dem Hochfeldteil mit den M_s-Werten von WEISS und FORRER [W 1]), nebst einigen weiteren Werten. Für den experimentell schwierigsten Effekt, den Ettingshausen-Effekt, existieren keine Messungen in Abhängigkeit vom Magnetfeld, die eine Bestimmung von P_0 und α_P erlauben würden. Eisen und Kobalt sind infolge ihrer hohen Sättigungsmagnetisierung experimentell schwerer zugänglich; man

findet daher keine Daten zur Berechnung von α_P, α_S und α_Q. Dagegen liegen einige ältere Messungen von SMITH [S 5] an Nickel-Legierungen vor (zwar nur in der Nähe des Curiepunktes), für welche wir folgende Parameterverhältnisse ermittelten:

Monel bei ca. 300° K $\quad \alpha_Q \approx 2\,\alpha_R$,

Nichrom bei ca. 370° K $\quad \alpha_Q \approx 0{,}7\,\alpha_R$.

Neuerdings bestimmten ALLISON und PUGH [A 1] an einer Nickel-Kupfer-Legierung unter Zuhilfenahme des Peltier-Effekts bei Zimmertemperatur $\alpha_Q \approx 0{,}8\,\alpha_R$.

Wie man aus Fig. 2 und 3 ersieht, stimmen die Feldparameter für Nickel grössenordnungsmässig überein, wobei jedoch α_Q höhere Werte

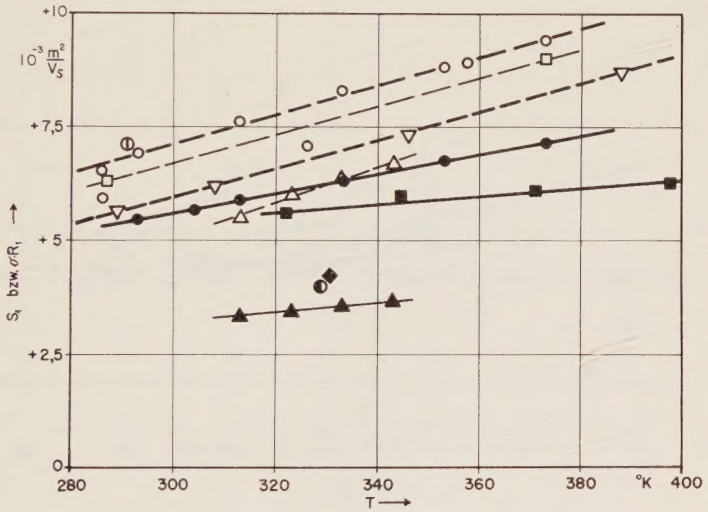


Fig. 4.
Vergleich von S_1 mit σR_1 für Eisen.

S_1	σR_1	
◐	⦶	nach Z 1
●	○	nach H 3
■	□	nach U 1
◆		nach S 8
▲	△	nach B 5
	▽	nach J 3

annimmt, in Übereinstimmung mit theoretischen Überlegungen von MEYER [M 2] (vgl. (16a)). Dies würde bedeuten, dass das formal eingeführte „effektive Feld" nicht für alle Transversaleffekte gleich ist. Die Resultate bei den Legierungen lassen die Möglichkeit offen, dass das Verhältnis α_Q/α_R materialabhängig sein kann.

Gehen wir nun über zu den Beziehungen zwischen den Koeffizienten der Transversaleffekte. Die phänomenologische Herleitung von BRIDGMAN [B 2] ergibt

$$(QB) = \frac{\lambda}{T}(PB). \tag{7a}$$

Für Ferromagnete schreiben wir nach (13) und (15)

$$(Q_0 \mu_0 H + Q_1 M) = \frac{\lambda}{T}(P_0 \mu_0 H + P_1 M). \tag{17}$$

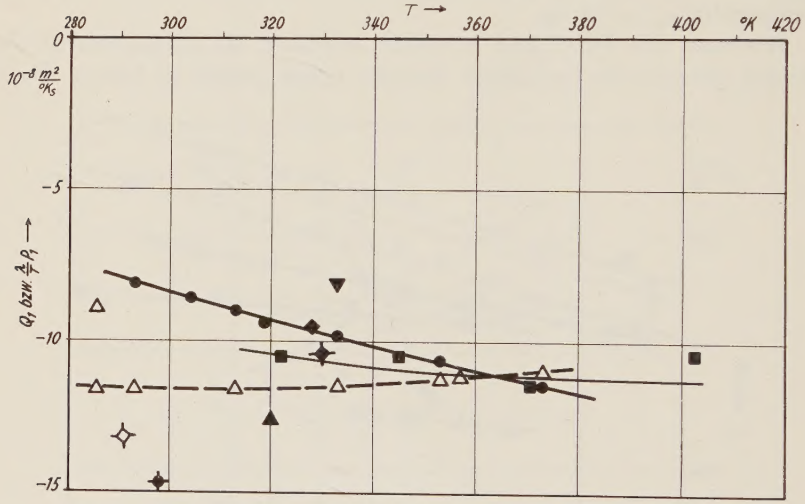


Fig. 5.
Vergleich von Q_1 mit $\frac{\lambda}{T} P_1$ für Eisen.

Q_1	$\frac{\lambda}{T} P_1$	
◆	◇	nach Z 1
●		nach C 1
●		nach H 3
▲	△	nach S 5
■		nach U 1
▼		nach S 6
◆		nach S 7

Die Gleichung (17) muss für ein beliebiges Magnetfeld gelten, also auch oberhalb der Sättigung, wo $M = M_s = \text{const}$. Daraus folgt sofort

$$Q_0 = \frac{\lambda}{T} P_0 \tag{18a}$$

und

$$Q_1 = \frac{\lambda}{T} P_1. \tag{18b}$$

Dasselbe gilt für die Beziehung (6)

$$S_0 = \sigma R_0 \tag{19a}$$

und

$$S_1 = \sigma R_1 . \tag{19b}$$

Auf Grund dieser Überlegungen wären für je zwei Effekte identische α-Werte zu erwarten:

$$\alpha_R = \alpha_S^{*}) \quad \text{und} \quad \alpha_Q = \alpha_P . \tag{20}$$

Fig. 4 zeigt den Vergleich von S_1 mit σR_1 für Eisen. Die Beziehung (19b) zwischen den ausserordentlichen Koeffizienten ist befriedigend

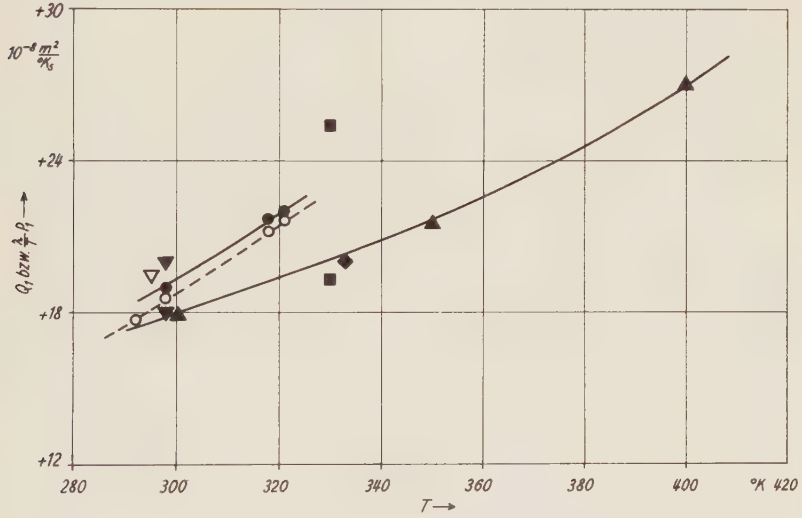


Fig. 6.

Vergleich von Q_1 mit $\frac{\lambda}{T} P_1$ für Kobalt.

Q_1	$\frac{\lambda}{T} P_1$	
■		nach N 1
▼	▽	nach Z 1
▲		nach S 4
◆		nach S 6
●	○	nach H 2

erfüllt. Die Koeffizienten von BUTLER und PUGH [B 5] fallen möglicherweise zu niedrig aus, da sie lediglich bei der Sättigungsmagnetisierung gemessen wurden.

*) $\alpha_R = \alpha_S$ erhält man auch, wenn man den Ansatz von KARPLUS und LUTTINGER [K 1] $E_y = r M_z E_x$ in die Boltzmannsche Transportgleichung einführt.

Fig. 5 illustriert die Gleichung (18b) für Eisen. Die Werte für die Wärmeleitfähigkeit wurden der Arbeit von JAEGER und DIESSELHORST [J 1] entnommen. Bei Eisen, wie auch bei Kobalt in Fig. 6 stimmen die Werte gut überein. Bei beiden Metallen sind aus den vorhandenen Messungen nur die ausserordentlichen Koeffizienten bestimmbar, da die Sättigungsmagnetisierung nie genügend überschritten wurde.

Den Zusammenhang zwischen S und σR für Nickel veranschaulicht Fig. 7 für den ausserordentlichen und Fig. 8 für den ordentlichen Effekt. Der Betrag von σR_1 steigt mit zunehmender Temperatur, wie das auch nach der Theorie [K 1] zu erwarten ist. Hingegen scheint $|S_1|$ abzunehmen, so dass die Übereinstimmung bei höheren Temperaturen immer schlechter würde.

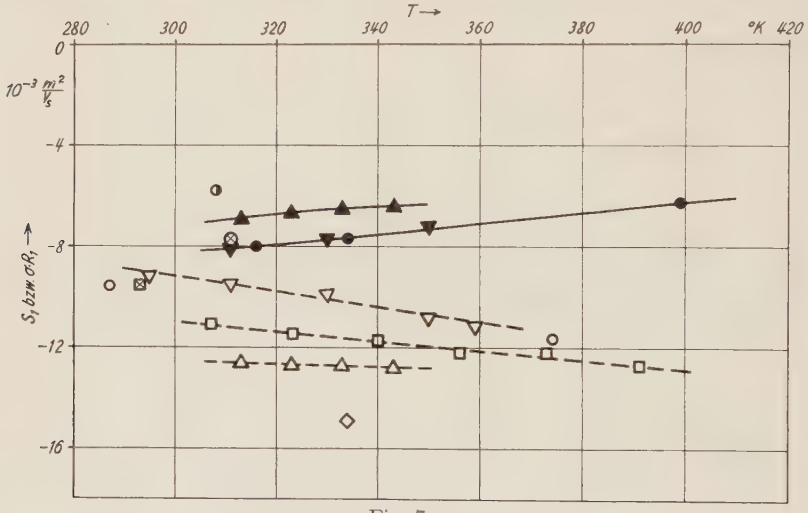


Fig. 7.
Vergleich von S_1 mit σR_1 für Nickel.

S_1	σR_1	
	⊗	nach M 3
◑		nach Z 1
●	○	nach U 1
◆		nach S 8
▼	▽	nach H 2
▲	△	nach B 5
	□	nach J 3
	⊠	nach J 4

Hier sollten allerdings genaue Messungen an derselben Probe über einen grösseren Temperaturbereich entscheiden. Mit dem gleichen Grad der Unsicherheit stimmt (19a) für die ordentlichen Koeffizienten.

Die grössten Abweichungen ergeben sich für den Ausdruck (18b) der ausserordentlichen Koeffizienten, wie Fig. 9 zeigt. Dass die Beziehungen

bei Nickel weniger gut erfüllt sind, kann seinen Grund darin haben, dass gegen den Curiepunkt hin Verunreinigungen eine immer grössere Rolle spielen und wir hier Messungen an verschiedenen Proben miteinander vergleichen*). In den meisten Arbeiten fehlen auch Angaben über den elektrischen Widerstand und die Wärmeleitfähigkeit der Proben, die deshalb aus andern Quellen übernommen werden mussten. Ausserdem wurde bei unseren Auswertungen die Feldabhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung [R 1] in der Nähe des Curiepunktes vernachlässigt.

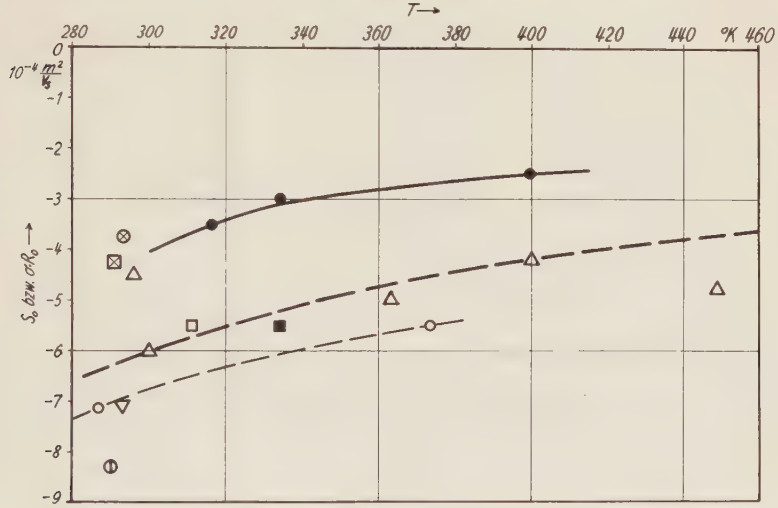


Fig. 8.
Vergleich von S_0 mit σR_0 für Nickel.

S_1 σR_0

- ⊠ nach E 1
- ⊗ nach K 3
- □ nach M 3
- △ nach S 4
- ● ○ nach U 1
- ■ nach S 8
- ▽ nach J 4
- ⊕ nach S 2

Im Rahmen der gemachten Einschränkungen darf man bei den betrachteten Ferromagneten die Beziehungen für die ausserordentlichen Koeffizienten wohl als erfüllt ansehen. Leider konnten wir für die ordentlichen Koeffizienten nur beim Nickel die Beziehung (19a) überprüfen.

*) Die Abweichungen lassen sich schwerlich allein auf den Gitteranteil der Wärmeleitfähigkeit (vgl. (6a)) zurückführen, da bei Nickel das Wiedemann-Franz-Lorenzsche Gesetz (9) relativ gut erfüllt ist.

Nehmen wir aber an, dass die ordentlichen Koeffizienten durch die Elektronentheorie der nichtferromagnetischen Metalle beschrieben werden, so können wir die Beziehungen (18b) und (19b) auch für diese Koeffi-

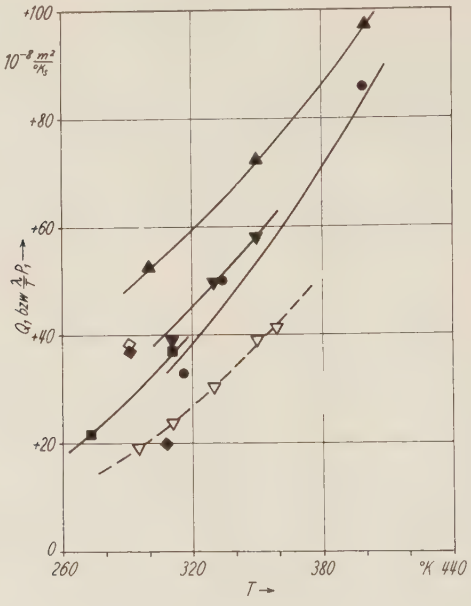


Fig. 9.

Vergleich von Q_1 mit $\frac{\lambda}{T} P_1$ für Nickel.

Q_1	$\frac{\lambda}{T} P_1$	
■		nach M 3
◆	◇	nach Z 1
▲		nach S 4
●		nach U 1
▼	▽	nach H 2

zienten als erfüllt ansehen. Daraus folgt aber unmittelbar $\alpha_R = \alpha_S$ und $\alpha_Q = \alpha_P$ (vgl. (20)).

Die Verknüpfung von α_R mit α_Q wäre durch die Moreau-Beziehung möglich

$$Q_{is} = \mu_P \sigma R. \tag{21}$$

μ_P = Koeffizient des Thomson-Potentialgradienten nach [S 9].

μ_P-Messungen existieren jedoch nicht.

Zum Schluss betrachten wir noch den Quotienten RQ/SP, der für nichtferromagnetische Metalle nach der Elektronentheorie die Lorenz-Zahl

$$L = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k}{e}\right)^2 = 2{,}45 \cdot 10^{-8} \left(\frac{V}{^0K}\right)^2 \tag{9}$$

ergibt. Da aus dem vorhandenen Zahlenmaterial kein P_0-Wert bestimmbar ist, können wir diesen Quotienten lediglich für die ausserordentlichen Koeffizienten berechnen (Tabelle 1).

Tabelle 1.

Vergleich der ausserordentlichen Koeffizienten mit der Lorenz-Zahl

$$L = 2{,}45 \cdot 10^{-8} \left(\frac{V}{^0K}\right)^2$$

Temperatur in ^{0}K		$\frac{R_1 Q_1}{P_1 S_1}$ in $10^{-8} \left(\frac{V}{^0K}\right)^2$	Literatur
Fe	ca. 300	ca. 5	Z 1
	293	2,5	H 3
	373	4,0	H 3
Co	ca. 300	2,5	Z 1
	298÷321	2,1÷2,2	H 2
Ni	ca. 300	4,6	Z 1
	311	3,1	H 2
	350	3,8	H 2

Die Zahlenwerte liegen in der Nähe des für nichtferromagnetische Metalle erwarteten Wertes. Nach unseren vorhergehenden Überlegungen über die paarweise Gleichheit der Feldparameter gilt

$$\frac{\alpha_R \alpha_Q}{\alpha_S \alpha_P} = 1 . \tag{20a}$$

Zusammen mit

$$\frac{R_1 Q_1}{S_1 P_1} = L \tag{22b}$$

ergibt sich dann

$$\frac{R_0 Q_0}{S_0 P_0} = L . \tag{22a}$$

Dieses Resultat ist verträglich mit der Annahme, dass die ordentlichen Koeffizienten dieser Effekte durch die Elektronentheorie der Metalle richtig wiedergegeben werden.

Zusammenfassend können wir feststellen: Die Feldparameter sind von der gleichen Grössenordnung, wobei paarweise Gleichheit besteht zwischen α_R und α_S bzw. α_P und α_Q. Die Experimente deuten darauf hin, dass möglicherweise $\alpha_Q \neq \alpha_R$. Soweit die experimentellen Daten einen Schluss zulassen, können die untersuchten Beziehungen zwischen den Koeffizienten als erfüllt angesehen werden.

Dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung danken wir für finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.

Literatur-Verzeichnis.

[A 1] F. E. Allison und E. M. Pugh, Phys. Rev. *102*, 1281 (1956).
[B 1] G. Borelius, Hdb. Metallphysik *1.1*, Leipzig 1935.
[B 2] P. W. Bridgman, Phys. Rev. *24*, 644 (1924).
[B 3] M. Bronstein, Phys. Z. Sowj. *2*, 28 (1932).
[B 4] G. Busch, F. Hulliger und R. Jaggi, Helv. Phys. Acta *30*, 472 (1957).
[B 5] E. H. Butler und E. M. Pugh, Phys. Rev. *57*, 916 (1940).
[C 1] L. L. Campbell, Phys. Rev. *26*, 416 (1908).
[E 1] A. v. Ettingshausen und W. Nernst, Sitz. ber. k. Akad. Wiss., Wien, *94*, 560 (1886).
[G 1] N. M. Genkin und G. P. Priporowa, Shur. exp. teor. fis. *26*, 323 (1954).
[H 1] E. H. Hall, Phil. Mag. *12*, 157 (1881).
[H 2] E. H. Hall, Proc. Nat. Acad. Sci. *11*, 416 (1925); Phys. Rev. *26*, 820 (1925).
[H 3] E. H. Hall und L. L. Campbell, Proc. Amer. Acad. *46*, 625 (1911).
[J 1] W. Jaeger und H. Diesselhorst, Wiss. Abh. Phys.-Tech. Reichsanst. *3*, 269 (1900).
[J 2] R. Jaggi und F. Hulliger in Landolt-Börnstein, Zahlenwerte und Funktionen, 6. Aufl., 2. Bd., 6. Teil, z. Zt. im Druck (Springer-Verlag, Berlin, Göttingen, Heidelberg).
[J 3] J.-P. Jan, Helv. Phys. Acta *25*, 677 (1952).
[J 4] J.-P. Jan und H. M. Gijsman, Physica *18*, 339 (1952).
[J 5] W. Jellinghaus und M. P. de Andrés, Arch. Eisenhüttenw. *27*, 187 (1956).
[K 1] R. Karplus und J. M. Luttinger, Phys. Rev. *95*, 1154 (1954).
[K 2] C. Kooi, Phys. Rev. *95*, 843 (1954).
[K 3] A. Kundt, Wied. Ann. Physik *49*, 257 (1893).
[M 1] W. Meissner, Hdb. Experimentalphysik *11*, *2*, Leipzig 1935.
[M 2] K. Meyer, Z. Naturforschg. *10a*, 166 (1955).
[M 3] G. Moreau, J. phys. *9*, 497 (1900).
[N 1] W. Nernst, Wied. Ann. Phys. *31*, 760 (1887).
[P 1] E. M. Pugh. Rev. *36*, 1503 (1930).
[P 2] E. H. Putley, Proc. Phys. Soc. B *68*, 35 (1955).
[R 1] N. Rostoker und E. M. Pugh, Phys. Rev. *82*, 125 (1951).
[S 1] A. Samoilowitsch und U. Konkov, Shur. exp. teor. fis. *20*, 782 (1950).
[S 2] J. Smit, Physica *21*, 877 (1955).
[S 3] A. W. Smith, Phys. Rev. *30*, 1 (1910).
[S 4] A. W. Smith, Phys. Rev. *33*, 295 (1911).
[S 5] A. W. Smith, Phys. Rev. *1*, 339 (1913).
[S 6] A. W. Smith, Phys. Rev. *8*, 79 (1916).
[S 7] A. W. Smith, Phys. Rev. *17*, 23 (1921).
[S 8] A. W. Smith und A. W. Smith, Phys. Rev. *5*, 35 (1915).
[S 9] A. Sommerfeld und N. H. Frank, Rev. Mod. Phys. *3*, 1 (1931).
[S 10] E. H. Sondheimer, Proc. Roy. Soc. A *193*, 484 (1948).
[U 1] F. Unwin, Proc. Roy. Soc. Edinburgh *34*, 208 (1913/14).
[W 1] P. Weiss und R. Forrer, Ann. phys. *5*, 153 (1926).
[W 2] A. H. Wilson, The Theory of Metals, 2. Aufl., Cambridge 1953.
[Z 1] H. Zahn, Ann. Physik *14*, 886 (1904).

Ein Modulationsverfahren für die Kernresonanzspektroskopie mit hoher Auflösung

von **H. Primas**

Organisch-chemisches Laboratorium der Eidg. Technischen Hochschule, Zürich

(25. IX. 1957)

Zusammenfassung. Es wird ein Seitenband-Modulationsverfahren diskutiert, das die direkte Registrierung von Absorptions- resp. Dispersionssignalen ermöglicht und speziell für die hochauflösende Kernresonanzspektroskopie geeignet ist. Dieses Modulationsverfahren erlaubt die Eliminierung des praktisch oft vorhandenen Noises bei sehr tiefen Frequenzen und ergibt eine absolute Nullpunktskonstanz, die u. a. die Anwendung von elektronischen Integratoren für routinemässige Strukturaufklärung von Molekeln erlaubt. — Die Blochschen Gleichungen werden für beliebige Modulationsamplituden des B_0-Feldes und für beliebige Grösse des B_1-Feldes allgemein gelöst und es wird die optimale Dimensionierung für das Modulationsverfahren diskutiert. Ein Vergleich mit dem statischen Verfahren ergibt auch für weisses Rauschen eine leichte Verbesserung des Signal-Rauschverhältnisses.

1. Einleitung

Zur Aufnahme von Kernresonanzspektren nach der stationären Messmethode sind im wesentlichen folgende Verfahren bekannt geworden:

a) statisches Verfahren,
b) Modulations-Abtastverfahren,
c) Modulations-Seitenbandverfahren.

Aus experimentellen Gründen wird praktisch immer mit einem Hochfrequenzfeld B_1 von konstanter Frequenz ω_0 und mit variablem Magnetfeld $B_0(t)$ gearbeitet. Bei den Modulationsverfahren b) und c) wird das Magnetfeld üblicherweise sinusförmig moduliert, so dass man $B_0(t)$ ansetzen kann:

$$\Delta\omega(t) = |\gamma| B_0(t) - \omega_0 = \overline{\omega} + \omega_M \cos \Omega t \tag{1}$$

wobei γ das gyromagnetische Verhältnis der untersuchten Atomkerne, Ω die Modulationskreisfrequenz und ω_M die in Frequenzen gemessene Modulationsamplitude ($\omega_M = |\gamma|\, B_M$) ist. Eine Messmethode heisst stationär, falls $d\overline{\omega}/dt \ll \omega_2^2$ ist ($\omega_2 = 1/T_2$ mit der Relaxationszeit T_2). Das statische Verfahren ist eine stationäre Messmethode, die keine Modula-

tion benützt ($\omega_M = 0$) und hat gegenüber den Modulationsmethoden den Nachteil, dass gewisse Störeffekte, wie schwankende Leakagespannungen (direktes Übersprechen von Hochfrequenzsender zu Empfänger) das Verhältnis Signal zu Rauschen eines Kernresonanzspektrums verschlechtern. Das in der Kernresonanzspektroskopie kleiner Auflösung übliche Modulations-Abtastverfahren[1]) vermeidet diesen Nachteil und benützt eine im Vergleich zu ω_2 kleine Modulationsfrequenz und Modulationsamplitude ($\omega_M \ll \omega_2$, $\Omega \ll \omega_2$). Bei Benützung eines auf die Frequenz Ω abgestimmten Lock-in-Verstärkers erhält man dabei direkt die Ableitung des Kernresonanzsignals. Diese Messmethode ist in der hochauflösenden Kernresonanzspektroskopie kaum anwendbar, da es aus experimentellen Gründen äusserst unbequem ist, den dabei notwendigen sehr kleinen Modulationsfrequenzen zu arbeiten (z. B. dürfte bei einer Auflösung von 10^{-8} bei einer Frequenz von 25 MHz die Modulationsfrequenz 0,1 Hz auf keinen Fall überschreiten). Weiter ist bei den höchstauflösenden Spektrographen die mögliche Auflösung meist durch das zeitlich stochastisch schwankende Magnetfeld bestimmt. Durch dieses stochastisch schwankende Magnetfeld erhält man einen Signalfehler, der nur mit der Methode a) und c) beliebig nahe an das theoretisch mögliche Minimum (vgl.[2]) Gl. (25)) gebracht werden kann, während mit der Modulations-Abstastmethode der durch das schwankende Magnetfeld verursachte Fehler immer wesentlich grösser ist.

Aus diesen Gründen wurde bisher bei sehr hohen Auflösungen wohl immer nur mit der statischen Methode gearbeitet. Man kann zwar auch bei der statischen Methode durch geeignete Konstruktion des Messkopfes die Leakageschwierigkeiten weitgehend eliminieren (vgl. z. B.[3])), jedoch zeigt eine Analyse von Spektren, die im Routinebetrieb ohne besondere Vorsichtsmassnahmen aufgenommen wurden, dass das Rauschspektrum nicht weiss ist, sondern bei tiefen Frequenzen wesentlich über das Niveau des Johnsonrauschens ansteigt. Durch das im folgenden genauer beschriebene Modulations-Seitenbandverfahren c) können diese zusätzlichen Rauschanteile bei den tiefen Frequenzen, die im wesentlichen von Leakageschwankungen u. dgl. herrühren, vollständig beseitigt werden, wobei die Nachteile, die das Modulations-Abtastverfahren bei hohen Auflösungen hat, vermieden werden. Im Gegensatz zum Modulations-Abtastverfahren benützt das Seitenbandverfahren eine Modulationsfrequenz, die grösser ist, als die Ausdehnung des gesamten Linienkomplexes und insbesondere viel grösser als die Linienbreite $2\,\omega_2$ einer einzelnen Linie. Im folgenden soll die Frage der optimalen Wahl der Modulationsamplitude diskutiert werden, wobei wir als Optimalkriterium das Signal/Rausch-Verhältnis bei einer vorgegebenen, noch zulässigen Sättigung der Kernresonanzlinie durch das B_1-Feld wählen.

2. Lösung der Blochschen Gleichung für grosse Modulationsfrequenzen bei beliebiger Modulationsamplitude und beliebigem B_1-Feld

Das Modulations-Seitenbandverfahren gründet sich auf die wohlbekannten Modulationseffekte in der Kerninduktion, wie sie in der Literatur wiederholt behandelt wurden[4]) und wurde z. B. von HALBACH[5]) als Ersatz für das Modulations-Abtastverfahren für Untersuchungen bei hoher Auflösung vorgeschlagen. Unseres Wissens wurde aber diese Methode bisher noch nie für den vorliegenden Zweck (Eliminierung von Noise und Drift, hervorgerufen durch Leakageschwankungen) verwendet, ebensowenig steht aus der Literatur[4])[5]) eine genügend allgemeine Lösung der Blochschen Gleichung zur Verfügung, die eine Diskussion des Signal/Rausch-Verhältnisses und eine optimale Dimensionierung erlauben würde. HALBACH[5]) behandelt die Amplitudenmodulation des B_0-Feldes als gleichbedeutend mit einer Frequenzmodulation des B_1-Feldes, was aber, wie aus der Blochschen Gleichung ersichtlich ist, im allgemeinen nicht zulässig ist und nur qualitativ richtige Resultate liefert. Daher werden wir zunächst die allgemeinen Lösungen der Blochschen Gleichungen für grosse Modulationsfrequenzen (d. h. $\Omega \gg \omega_2$), für beliebige Modulationsamplituden ω. und beliebiges B_1-Feld herleiten. In der üblichen Schreibweise[6]) lauten die Blochschen Gleichungen in einem mit ω_0 rotierenden Koordinatensystem:

$$dF/dt + (\omega_2 + i\Delta\omega)\,F = -\,|\gamma|\,B_1 M_z \tag{1}$$

$$dM_z/dt + \omega_1 M_z \qquad = \omega_1 M_0 + |\gamma|\,B_1 v \tag{2}$$

mit $F = v + iu$ und den Blochschen Relaxationszeiten $T_1 = 1/\omega_1$ und $T_2 = 1/\omega_2$. Die experimentell beobachtete Magnetisierung ist dann durch $M_y =$ Realteil $(\mathrm{F} \cdot \exp(-i\omega_0 t)) = \mathrm{v} \cdot \cos\omega_0 t + u \cdot \sin\omega_0 t$ gegeben, wobei v das durch die Absorption und u das durch die Dispersion entsprechende Kernresonanzsignal ist. Nach einer Idee von GABILLARD[4]) ist es vorteilhaft, lediglich für v eine Fourierentwicklung anzusetzen:

$$v = \sum_{n=-\infty}^{\infty} v_n e^{\mathrm{in}\Omega t} \tag{3}$$

Damit können wir Gl. (2) integrieren

$$\mathrm{M}_z = M_0 + |\gamma| B_1 \sum_{n=-\infty}^{\infty} v_n \frac{\exp(\mathrm{in}\,\Omega t)}{\omega_1 + \mathrm{in}\,\Omega} \tag{4}$$

Die Modulationsfrequenz Ω können wir nun immer viel grösser als ω_1 wählen,

$$\Omega \gg \omega_1 \tag{5}$$

und damit folgt aus Gl. (4), dass M_z in ausgezeichneter Näherung zeitunabhängig wird:

$$M_z = M_0 + (|\gamma| B_1 v_0/\omega_1)\ (1 + 0\ (\omega_1/\Omega)) \tag{6}$$

In der weiter unten beschriebenen praktischen Realisierung des Modulationsverfahrens ist ω_1/Ω von der Grössenordnung 10^{-2} bis 10^{-3}, so dass die Näherung (6) berechtigt ist. Mit Gl. (6) und Gl. (1–1) können wir Gl. (1) sofort integrieren und erhalten:

$$F = -|\gamma| B_1 (M_0 + |\gamma| B_1 v_0/\omega_1) \int_{-\infty}^{t} e^{-(\omega_2 + i\bar{\omega})\cdot(t-\tau)} \times \exp\left\{-i \int_{\tau}^{t} \cos.(\Omega x)\, dx\right\} d\tau \tag{7}$$

Dabei haben wir die Voraussetzung der Stationarität ($d\bar{\omega}/dt \ll \omega_2^2$) benützt und die bekannte Tatsache beachtet, dass man dann für die Integrationen $\bar{\omega}$ in erster Näherung als konstant betrachten darf, (Beweis durch partielle Integration!). Durch Fourierentwicklung des letzten Exponentialfaktors in Gl. (7) kann man die Integrationen ausführen und erhält:

$$F = m \sum_{-\infty}^{\infty} \sum_{-\infty}^{\infty} J_\nu(\omega_M/\Omega)\, J_\mu(\omega_M/\Omega)\, e^{i(\nu-\mu)\Omega t} \left\{\omega_2 + i(\bar{\omega} + \mu\Omega)\right\}^{-1} \tag{8}$$

$$\text{mit} \qquad m = |\gamma|\, B_1 (M_0 + |\gamma|\, B_1 v_0/\omega_1) \tag{9}$$

wobei J_ν die ν-te Besselsche Funktion ist. Aus Gl. (8) erhält man für v_0:

$$v_0 = -m \sum_{\nu=-\infty}^{\infty} J_\nu^2(\omega_M/\Omega)\ \omega_2 \left\{\omega_2^2 + (\bar{\omega} + \nu\Omega)^2\right\}^{-1} \tag{10}$$

Mit der Abkürzung

$$\beta = (\gamma B_1)^2 (\omega_2/\omega_1) \sum_{\nu=-\infty}^{\infty} J_\nu^2(\omega_M/\Omega) \left\{\omega_2^2 + (\bar{\omega} + \nu\Omega)^2\right\}^{-1} \tag{11}$$

lautet Gl. (10)

$$(\gamma B_1)^2 v_0/\omega_1 = -\beta m$$

und somit erhalten wir mit Gl. (9) für die Grösse m den Ausdruck:

$$m = |\gamma|\, B_1 M_0/(1 + \beta) \tag{12}$$

Damit erhalten wir die gesuchte allgemeine Lösung der Blochschen Gleichungen:

$$F = -|\gamma| B_1 M_0 (1+\beta)^{-1} \sum_{\nu=-\infty}^{\infty} \sum_{\mu=-\infty}^{\infty} J_\nu(\omega/\Omega)\, J_\mu(\omega/\Omega) e^{i(\nu-\mu)\Omega t} \times \left\{\omega_2 + i(\bar{\omega} + \mu\Omega)\right\}^{-1} \tag{13}$$

mit β aus Gl. (11). Diese Lösung ist korrekt für beliebige Modulationsamplituden ω_M und beliebige Grösse des Hochfrequenzfeldes B_1, es wurde nur vorausgesetzt, dass $\Omega \gg \omega_1$ und dass $\bar{\omega}$ langsam variabel ist, $d\bar{\omega}/dt \ll \omega_2^2$.

In der experimentellen Realisation der Modulationsverfahren benützt man einen mit der Referenzfrequenz Ω gesteuerten phasenempfindlichen Detektor, so dass von dem Signal $F(t)$ nur die erste Harmonische einen Beitrag für den Ausgang des Detektors liefert, d. h. in der Fourierentwicklung

$$F = \sum_{-\infty}^{\infty} F_n e^{in\Omega} \tag{14}$$

nur die Terme F_{+1} und F_{-1}:

$$F_{\pm 1}(\bar{\omega}) = -|\gamma| B_1 M_0 (1+\beta)^{-1} \sum_{\mu}^{\infty} J_\mu J_{\mu \pm 1} \{\omega_2 + i(\bar{\omega} + \mu\Omega)\}^{-1} \tag{15}$$

Da $\Omega \gg \omega_2$ (in der hochauflösenden Spektroskopie ist praktisch immer $\omega_1 \approx \omega_2$) sind die im Abstand Ω auftretenden Seitenbandlinien sauber voneinander getrennt und somit ist die Funktion $F_{\pm 1}(\bar{\omega})$ in der Nähe der Hauptlinie ($\mu = 0$) gegeben durch

$$F_{\pm 1}(\bar{\omega}) = \pm |\gamma| B_1 M_0 (1+\beta)^{-1} J_0(\omega_M/\Omega) J_1(\omega_M/\Omega) (\omega_2 + i\bar{\omega})^{-1}$$

mit

$$\beta = (\gamma B_1)^2 (\omega_2/\omega_1) J_0^2(\omega_M/\Omega) (\omega_2^2 + \bar{\omega}^2)^{-1} \tag{16}$$

Bezeichnen wir den Anteil der ersten Harmonischen von $F(t)$ in der Nähe der Hauptlinie ($\mu = 0$) mit $G(t)$, so finden wir, dass am Ausgang des phasenempfindlichen Detektors für $\Omega - |\omega| \gg \omega_2$ von der Funktion $F(t) = G(t) + \cdots$ nur der Anteil $G(t)$ einen Beitrag ergibt, wobei:

$$\boxed{G(t) = 2i \sin(\Omega t) |\gamma| B_1 M_0 (1+\beta)^{-1} J_0(\omega_M/\Omega) J_1(\omega_M/\Omega) (\omega_2 + i\bar{\omega})^{-1}} \tag{17}$$

wobei β durch Gl. (16) gegeben ist und die Grössen B_1 und ω_M beliebig sein dürfen. Diese Gleichung ist die Grundlage für die Diskussion des Signal/Noise-Verhältnisses beim Modulationsverfahren und erlaubt den Vergleich dieser Modulationsmethoden mit dem statischen Verfahren, worauf wir im folgenden eingehen.

3. Vergleich der Modulationsmethode mit der statischen Methode für den Fall schwacher Sättigung durch das B_1-Feld

Um eine Linienverbreiterung durch das B_1-Feld zu vermeiden, arbeitet man in der hochauflösenden Kernresonanzspektroskopie durchwegs mit sehr kleinen B_1-Feldern, so dass es statthaft ist, nach Potenzen des B_1-Feldes zu entwickeln. Damit folgt mit Gl. (2–16) für

$$(1+\beta)^{-1} = 1 - (\gamma B_1)^2 (\omega_2/\omega_1) J_0^2 (\omega_M/\Omega) (\omega_2^2 + \bar{\omega}^2)^{-1} + 0 (\gamma B)^3$$

und somit mit Gl. (2–17):

$$G(t)/\sin \Omega t = -2 i J_1 (\omega_M/\Omega) |\gamma| \bar{B}_1 M_0 (\bar{\omega}_2 + i\bar{\omega})^{-1} \left\{1 - (\gamma \bar{B}_1)^2 (\omega_2/\omega_1) (\omega_2^2 + \bar{\omega}^2)^{-1} + 0 (\gamma \bar{B}_1)^4\right\} \quad (1)$$

$$\text{mit} \qquad \bar{B}_1 = B_1 J_0 (\omega_M/\Omega) \quad (2)$$

Für die stationäre Methode ($\omega_M = 0$) findet man dagegen mit $H = [F]_{\omega_M = 0}$ aus Gl. (2–13)

$$H(\bar{\omega}) = -|\gamma| B_1 M_0 (\omega_2 + i\bar{\omega})^{-1} \left\{1 - (\gamma B_1)^2 (\omega_2/\omega_1) (\omega_2^2 + \bar{\omega}^2)^{-1} + 0 (\gamma B_1)^4\right\} \quad (3)$$

Der Vergleich von (1) mit (2) zeigt, dass bei der Seitenband-Modulationsmethode bei kleinen B_1-Feldern gleiche Sättigungsverhältnisse vorliegen wie bei der statischen Methode, wenn das B_1-Feld bei der Modulationsmethode um den Faktor $1/J_0(\omega_M/\Omega)$ erhöht wird. Bei der Modulationsmethode erhält man gemäss Gl. (1) bei einem vorgegebenen, kleinen Sättigungsgrad eine maximale Signalgrösse, falls $J_1 (\omega_M/\Omega)$ maximal ist, dies ist der Fall für $\omega_M/\Omega = 1{,}84$, dabei ist

$$\text{Max } J_1(x) = J_1(1{,}84) = 0{,}5819 \quad (4)$$

Der Real- resp. Imaginärteil (je nach der experimentellen Anordnung) von der rechten Seite von Gl. (1) und Gl. (3) stellt direkt das beobachtete Signal dar. Da ein idealer phasenempfindlicher Detektor das Powerspektrum des Noise bis auf eines Verschiebung um die Frequenz Ω unverändert lässt, können im Falle von additivem *weissem* Rauschen Gl. (1) und (3) direkt miteinander verglichen werden. Dabei ergibt sich, dass im Falle von weissem Rauschen die Modulationsmethode der statischen Methode bei gleichen Sättigungsverhältnissen leicht überlegen ist, denn sie liefert bei optimaler Dimensionierung und bei gleicher Rauschspannung eine um den Faktor $2\,\text{Max}\,J_1 = 1{,}164$ höhere Signalspannung (Verbesserung des Signal/Noise-Verhältnisses um 1,3 dB). Falls das Noise-

spektrum nicht weiss ist, sondern bei tiefen Frequenzen stark ansteigt, erhält man bei der üblichen Verwendung eines Tiefpasses nach dem Detektor wegen der Transposition des wirksamen Noisespektrums um die Frequenz Ω natürlich zusätzlich bei den Modulationsverfahren bekannte wesentliche Verbesserung des Signal/Noise-Verhältnisses, die praktisch bis zur völligen Elimination des Rauschanteiles der sehr tiefen Frequenzen getrieben werden kann.

Dass das Modulationsverfahren bei gleicher schwacher Sättigung ein um einen kleinen (praktisch nicht sehr wesentlichen) Faktor grösseres Signal/Rauschverhältnis ergibt, ist zunächst überraschend, rührt aber davon her, dass das Sättigungsverhalten bei der Modulationsmethode wesentlich anders und komplizierter ist, als bei der statischen Methode, und dass wir nur das für die hochauflösende Spektroskopie allein interessierende Verhalten bei kleiner Sättigung verglichen haben.

4. Praktische Realisierung des Seitenband-Modulationsverfahren

Wie aus Gl. (3–1) und (3–2) ersichtlich ist, kann die Ermittlung der optimalen Modulationsamplitude nicht einfach dadurch geschehen, dass man die Modulationsamplitude variiert und dabei die Grösse des Kernresonanzsignals verfolgt, da durch die Variation der Modulationsamplitude auch das für die Sättigung wirksame $\overline{B}_1$-Feld von Gl. (3–2) geändert wird und somit die Signalgrösse auch durch die Sättigung beeinflusst wird. Durch einen einfachen Trick kann aber die optimale Modulationsamplitude sehr rasch ermittelt werden. Aus Gleichung (2–17) ist ersichtlich, dass die (für diese Modulationsmethode benützte) Hauptlinie bei den Nullstellen der Besselfunktionen J_0 und J_1 verschwindet. Die erste Nullstelle ist bei $\omega_M/\Omega = 2{,}4048$ ($J_0(2{,}4048) = 0$). Diese Nullstelle kann durch Variation der Modulationsamplitude sehr genau bestimmt werden, da an dieser Stelle das Kernresonanzsignal nicht nur verschwindet, sondern auch sein Vorzeichen wechselt. Der an dieser Nullstelle bestimmte Wert des Modulationsfeldes kann nun leicht als Eichung für die Einstellung des optimalen Wertes von $\omega_M/\Omega = 1{,}84$ benützt werden.

Ein bereits früher beschriebener (vgl.[3]) Kernresonanzspektrograph wurde mit dieser Modulationsmethode ausgerüstet. Für die Aufnahme von Protonenspektren in organischen Verbindungen wurde eine Modulationsfrequenz von ca. 500 Hz gewählt, so dass die neben der Hauptlinie auftretenden Seitenbandlinien immer sicher ausserhalb des Linienkomplexes der Hauptlinie liegen (Frequenz des B_1-Feldes: 25 MHz). Es sei bemerkt, dass die Frequenz- und Amplitudenkonstanz des Modulationszillators sehr gut sein soll, da der optimale Wert von ω_M/Ω einigermassen kritisch ist. Ein wahlweise einschaltbarer Attenuator mit dem

Abschwächungsverhältnis 1,84/2,405 erlaubt die rasche Durchführung des oben beschriebenen Testes für die optimale Modulationsamplitude. Als phasenempfindlicher Detektor wurde ein früher beschriebener (vgl. [3])) Typ verwendet.

Gegenüber der stationären Methode muss das B_1-Feld bei der Anwendung der Seitenband-Modulationsmethode bei optimaler Modulationsamplitude um den Faktor $1/J_0(1{,}84) \approx 3{,}16$ erhöht werden.

Verschiedene Folgerungen aus den oben hergeleiteten Relationen (optimale Modulationsamplitude von $\omega_M/\Omega = 1{,}84$; gegenüber der stationären Methode notwendige Erhöhung des B_1-Feldes um den Faktor $1/J_0(\omega_M/\Omega)$; Signal/Noise-Verhältnis im Vergleich zur stationären Methode wurden experimentell innerhalb der Messgenauigkeit (ca. $\pm$ 10%) verifiziert.

Dank der durch diese Modulationsmethode erreichten Nullpunktsstabilität des Ausgangssignals konnte der Kernresonanzspektrograph mit einem elektronischen Integrator versehen werden, so dass gleichzeitig mit dem Absorptionssignal dessen Integral auf einem Recorder aufgezeichnet werden kann. Die Integration von Kernresonanzlinien ist zur Strukturaufklärung (Ermittlung der Anzahl von äquivalenten oder ähnlichen Teilchen in einer Molekel) und zur Momentenanalyse von Kernresonanzspektren von grosser praktischen Wichtigkeit, und kann elektronisch genauer und viel bequemer als durch Planimetrieren durchgeführt werden. Als Integrator dient ein üblicher Millerintegrator mit einer Zeitkonstante von 10^5 sec.

Ich danke der Emil-Barell-Stiftung zur Förderung der medizinisch-wissenschaftlichen Forschung, der Firma Hoffmann-La Roche & Cie., AG. Basel und dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der Wissenschaften (Projekt Nr. 721) für die Unterstützung dieser Arbeit.

Literaturverzeichnis

[1]) R. V. Pound, Phys. Rev. *72*, 527 (1947), Bloembergen, Purcell, Pound, Phys. Rev. *73*, 679 (1948).

[2]) H. Primas, Helv. Phys. Acta *30*, 315 (1957).

[3]) H. Primas, Hs. H. Günthard, Helv. Phys. Acta *30*, 315 (1957).

[4]) R. Karplus, Phys. Rev. *73*, 1027 (1948); B. Smaller, Phys. Rev. *83*, 812 (1951); J. H. Burgess, R. M. Brown, Rev. Sci. Instr. *23*, 334 (1952); E. E. Salpeter, Proc. Phys. Soc. *63*, 337 (1950); R. Gabillard, Compt. Rend. (Paris) *232*, 96 (1951); J. T. Arnold, M. E. Packard, J. Chem. Phys. *19*, 1608 (1951); K. Halbach, Helv. Phys. Acta *27*, 259 (1954).

[5]) K. Halbach, Helv. Phys. Acta *29*, 37 (1955).

[6]) F. Bloch, Phys. Rev. *70*, 460 (1946); B. A. Jacobsohn, R. K. Wangsness, Phys. Rev. *73*, 942 (1948).

Sur la luminescence de CsI et NaI

par **H. Enz** et **J. Rossel**
(Institut de Physique, Université de Neuchâtel)

(30. IX. 1957)

Summary. Improved measurements of the decay law and of the temperature dependance of the decay time and luminescent yield have been made for two types of scintillations in pure CsI and NaI. The results show that the one type is described by a relatively simple model and may be explained, as already suggested[2]) for NaI, as the recombination of degenerated excitons, self-trapped in the crystal lattice.

The other type of scintillations, however, is related to permanent defects produced in the crystal by thermal treatment or plastic deformation and is only partially accounted for by the simple general model valid in the first case.

I. Introduction

L'étude systématique des scintillations luminescentes dans les iodures d'alcalins, effectuée dans cet institut[1]) a montré l'existence de centres luminescents *liés au réseau propre du cristal.*

Un certain nombre de composantes étudiées se conforment au mécanisme suivant:

1° La recombinaison radiative directe des paires électrons-trous +, produits par l'action des radiations nucléaires (α, β, γ) ou X est interdite.

2° Electron et trou positif doivent être capturés par le centre, successivement ou comme paire liée (exciton), pour que le cycle luminescent se referme.

3° Le centre possède un état métastable suffisamment au-dessous de la bande de conduction pour empêcher un dépiègeage thermique de l'électron avec recapture ultérieure possible (même situation également pour le trou +).

4° La désexcitation du centre se fait par deux voies: l'une radiative, l'autre non-radiative, avec des énergies d'activation E_1 et E_2. Les probabilités de passage k_1 resp. k_2 sont de la forme $k_{1,2} = s_{1,2} \exp(-E_{1,2}/kT)$. Il en résulte un temps de déclin pour le processus «monomoléculaire» (exponentiel) $\tau(T)$ et un rendement luminescent $\eta(T)$ donnés par

$$\frac{1}{\tau} = k_1 + k_2 \qquad \eta = \frac{k_1}{k_1 + k_2}.$$

Le début ($0 < t \leqslant 10^{-7}$ s) du processus d'émission lumineuse peut être perturbé par une cinétique du 2e ordre plus ou moins complexe corres-

pondant à la migration et à la capture des trous + et des électrons par les centres, effet qui serait surtout sensible pour les déclins très courts (aux températures élevées).

Van Sciver[2]) a étudié, entre autres, plus spécialement une composante rapide ($\tau \simeq 10^{-8}$ s) de NaI pur qui avait échappée à notre investigation[1]), très probablement par suite de la présence d'impuretés dans notre matériel de base (Siegfried), et que nous avons maintenant observée avec de la substance d'autre provenance (Mallinckrodt, Merck). Cette composante se conforme également au modèle ci-dessus, mais avec $k_1 = \text{Const.}$, c'est-à-dire $E_1 = 0$. Van Sciver[2]) interprète ces scintillations rapides comme dues à la recombinaison d'un *exciton dégénéré* et trappé par polarisation dans le réseau de base du cristal.

Nous donnons ici les résultats d'une étude plus complète de la composante «froide» de CsI[1])[3]) qui nous semblait intéressante à ce point de vue particulier. L'autre type de scintillation observée dans CsI (composante «chaude») est de caractéristiques différentes[1])[3]) bien que très probablement liée, elle aussi, au réseau du cristal pur. La situation paraît très semblable dans NaI et c'est pourquoi nous avons reconsidéré également quelques caractéristiques de la composante luminescente de ce cristal appelée[1]) γ_4, homologue possible de la composante «chaude» de CsI.

II. Dispositif expérimental

Plus spécialement choisi pour étudier la *forme* du déclin des scintillations brèves (10^{-7} à 10^{-6} s) il utilise une excitation par rayons X pulsés (durée de l'éclair $\sim 10^{-8}$ s) et est représenté schématiquement dans la figure 1.

Différentes mesures de τ et de η ont été également faites par excitation $\gamma(Co^{60})$ et $\alpha(Po)$; on utilisait soit un arrangement du même type, soit un dispositif où le cristal était porté par un bloc de cuivre refroidi placé dans une enceinte à vide poussé munie d'une fenêtre de quartz. Les photomultiplicateurs utilisés étaient le tube DuMont 6291, le tube RCA 1P28 et un tube spécial AFIF (Zurich) pour l'ultra-violet.

Les monocristaux de CsI, préparés à partir de la *solution aqueuse* ne contenaient que Mg comme impureté spectroscopiquement détectable*) (substance de base des British Drug Houses (BDH)).

Le cristal de NaI provenait de notre première investigation[1]) (préparé à partir de la *substance fondue*, condition nécessaire à l'apparition de la composante γ_4).

*) Nous remercions M. S. Steinemann du L.S.R.H. (Neuchâtel) d'avoir effectué cette analyse pour nous.

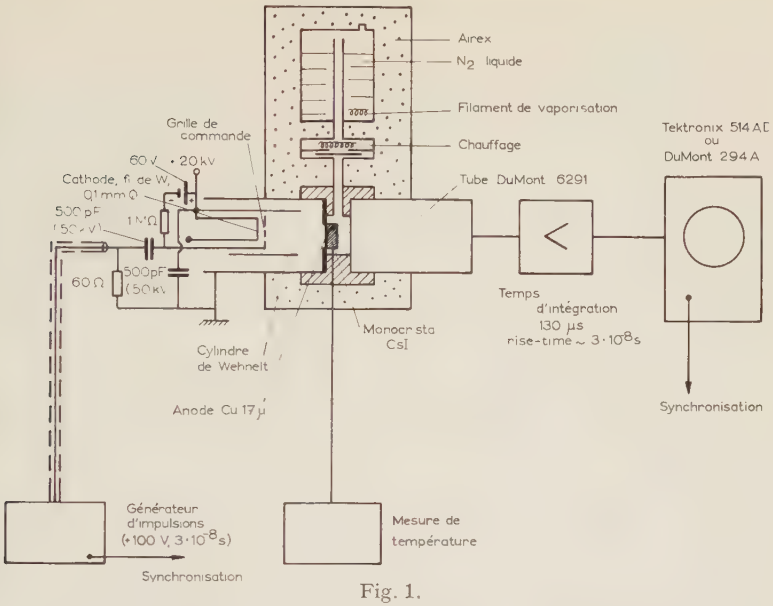


Fig. 1.

Schéma de principe du dispositif de mesure du temps de déclin.

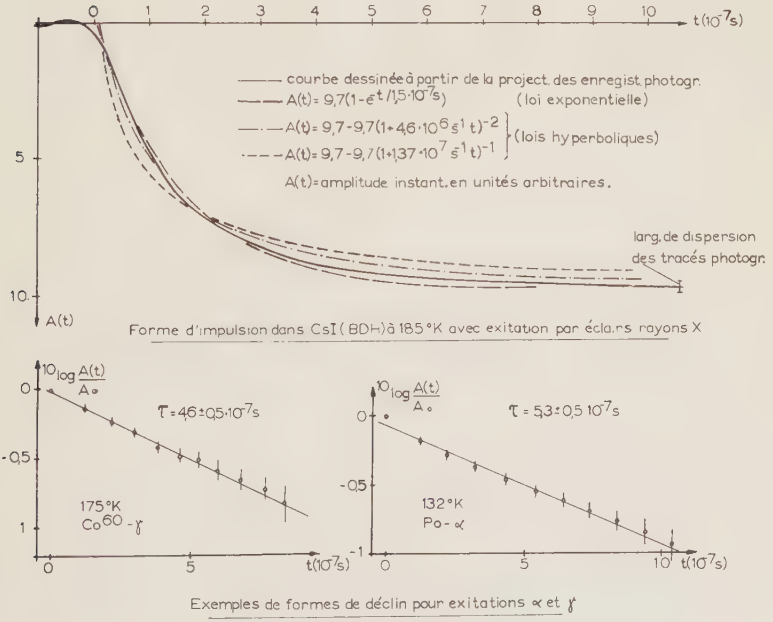


Fig. 2.

III. Résultats et discussion

CsI composante «froide».

La fig. 2 montre que le déclin luminescent est assez bien représenté par une exponentielle alors que des formes de type hyperbolique accusent des déviations plus grandes, surtout même au début de la scintillation. Le fait que la forme générale et la durée des scintillations sont identiques, que l'excitation se fasse par α ou par γ (fig. 3), est une indication plus certaine d'une cinétique du 1er ordre. Pour un processus à cinétique du 2nd ordre, la forme et le temps de déclin dépendent en effet de la densité d'ionisation et devraient donc être différents (τ plus court) pour l'excitation par les α.

L'impossibilité de détecter une perturbation du déclin exponentiel même pour les durées les plus courtes de la scintillation est un argument en faveur de l'interprétation de la composante «froide» comme *recombinaison d'un exciton dégénéré*:

Admettant, comme Van Sciver[2]) des sauts de l'ordre de kT (soit $\sim 1/60$ eV à 200° K) dans la dégradation d'énergie de l'exciton et une fréquence de 10^{13} sauts/s, il ne faut pas plus de 10^{-11} s à l'exciton libre pour perdre son énergie de surplus (~ 2 eV) et être trappé dans le réseau.

Au contraire la capture successive des électrons et trous + par des centres dont la section efficace peut s'estimer à $\sigma \simeq 10^{-15}$ cm^2 et la concentration guère supérieure à $n = 10^{15}$ cm^{-3} exigerait un temps de l'ordre de $1/n\sigma v_{th}$ soit $\sim 10^{-7}$ s (pour $v_{th} = 10^7$ cm/s). La perturbation du déclin exponentiel se manifesterait donc à 200° K, contrairement aux observations, sur une durée du même ordre que les scintillations elles-mêmes (voir fig. 3).

A partir des mesures de τ en fonction de T représentées dans la fig. 3, on déduit les valeurs suivantes:

$$s_1 = (1{,}30 \pm 0{,}05) \cdot 10^6 \ s^{-1} \qquad {}^{10}\log \frac{s_2}{s_1} = 2{,}25 \pm 0{,}05$$

$$E_1 = 0 \qquad E_2 = (0{,}055 \pm 0{,}005) \text{ eV}.$$

En accord avec le résultat $E_1 = 0$, nous n'avons décelé aucune thermoluminescence dans le domaine des températures accessibles ($\geqslant 77°$ K).

s_1 paraît un peu faible pour une transition permise (dans NaI, $s_1 \simeq 3 \cdot 10^7$ s^{-1}) mais il est possible que la structure cristalline différente pour CsI soit responsable de cet empêchement de transition.

Le spectre d'émission de la composante froide a été mesuré sur l'un de nos cristaux avec excitation $\gamma(Co^{60})$ ou α(Am) par Hahn et Van Sciver*) et présente à 77° K l'allure indiquée dans la fig. 4. Aux températures croissantes les deux maxima s'affaiblissent sans se déplacer sen-

*) Nous sommes reconnaissants au Dr. B. Hahn de nous avoir obligeamment transmis ces résultats non publiés.

siblement mais leur rapport d'intensité s'inverse. Alors qu'entre 77° K et 200° K le pic situé à 3,8 eV décroît d'un facteur 15 environ, celui situé à 3,5 eV diminue approximativement d'un facteur 150 pour ne plus re-

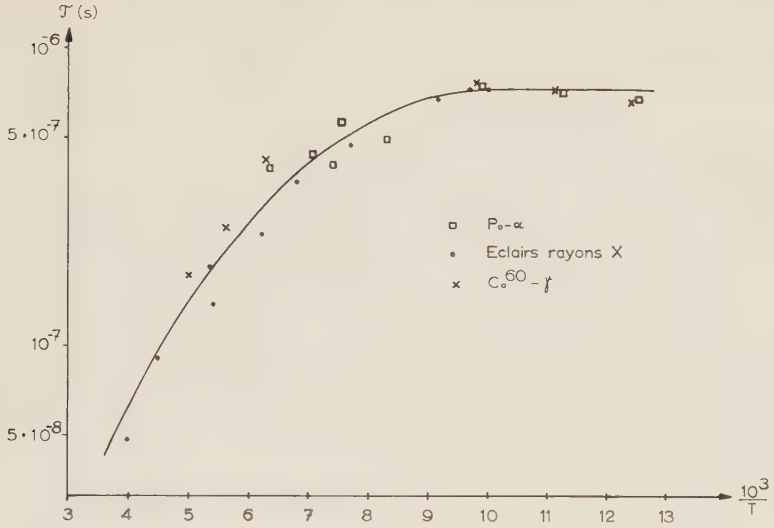


Fig. 3.
CsI Composante froide.

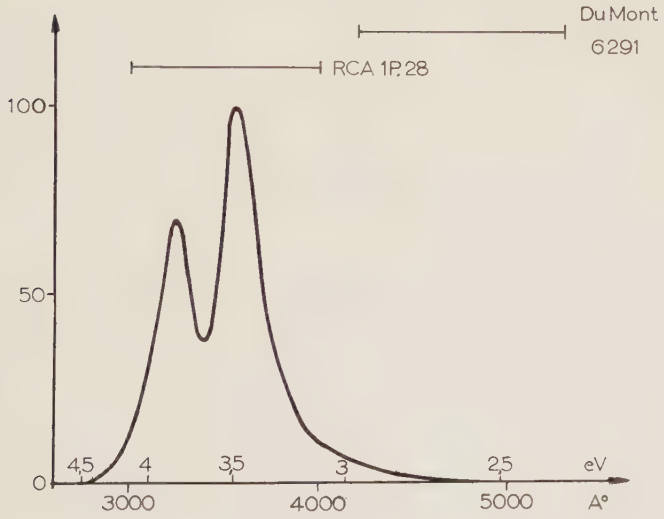


Fig. 4.

Spectre d'émission de CsI(BDH) à 77° K avec excitation par les γ de Co^{60}. Les intervalles indiqués |——| correspondent au domaine de sensibilité spectrale maximum (>80%) des deux premiers tubes utilisés. Le tube AFIF a une réponse spectrale pratiquement constante entre 4500 et 2800 Å.

présenter alors que 1/15 du maximum d'énergie supérieure. L'allure des spectres est la même et leur comportement analogue avec l'excitation par les γ ou par les α.

La mesure de $\eta(T)$ pour le spectre global n'est bien assurée que par les tubes 1P28 et AFIF dont la réponse spectrale est nettement mieux adaptée que celle du tube 6291. Les mesures du rendement par la hauteur d'impulsion intégrée ou par le courant moyen en régime stationnaire d'excitation ont bien été trouvées compatibles dans les limites d'erreur. Dans tous les cas on observe une nette approche de la saturation vers les basses températures et l'extrapolation à la limite constante se fait avec une bonne précision. Ceci est en désaccord avec les observations de KNOEPFEL, LOEPFE et STOLL[4]); ces auteurs observent également un maximum d'émission vers 4600 Å. Nous ne nous expliquons pas l'origine de ces discordances, sinon qu'il s'agit d'une composante luminescente différente de celle que nous étudions.

Utilisant parmi nos mesures celles qui nous paraissent le plus exactes (courant luminescent moyen avec cristal dans enceinte évacuée et photomultiplicateur à température constante) nous obtenons, par ajustement* de la droite

$$\ln\left(\frac{1}{\eta}-1\right)=\ln\frac{s_2}{s_1}-\frac{E_2-E_1}{k}\cdot\left(\frac{1}{T}\right)=f\left(\frac{1}{T}\right)$$

aux points expérimentaux fournis par les tubes 1P28 et AFIF avec excitation $\gamma(Co^{60})$, les valeurs suivantes:

$$^{10}\log\frac{s_2}{s_1}=2{,}24\pm0{,}10\quad E_2-E_1=(0{,}060\pm0{,}004)\text{ eV}\ (=E_2\text{ si }E_1=0).$$

On constate que l'accord avec les valeurs déduites de l'étude de $\tau(T)$ est satisfaisant.

Les mesures d'absorption spectrales dans les iodures d'alcalins de MARTIENSSEN[5]) nous permettent de déduire que la formation d'un exciton libre dans CsI exige une énergie minimum de 5,74 eV à 100° K (5,81 eV à 20° K).

Suivant que nous prenons comme caractéristique de la recombinaison de l'exciton dégénéré le pic d'émission à 3,5 eV (3560 Å) ou celui de 3,8 eV (3250 Å) on en conclut que l'exciton libre dissipe en phonons, avant d'être trappé dans le réseau polarisable, une énergie de 2,2 eV ou de 1,9 eV. Tous les deux pics d'ailleurs peuvent provenir de la recombinaison d'excitons, plusieurs niveaux d'excitation étant possibles; dans CsI en particulier on observe[5]) deux maxima d'absorption dans le domaine spectral précédant l'absorption par transition bande-bande.

Ces résultats devraient être comparés, comme le tente VAN SCIVER[2]) pour NaI, aux observations sur l'émission photoélectrique externe in-

* Pour cet ajustement nous n'utilisons que le domaine de températures inférieures à 170 °K sur lequel, pour les cristaux e'tudiés, la composante „chaude', est négligeable.

duite par excitons sur les centres F. Des mesures bien connues de APKER et TAFT[6]) de cet effet pour RbI on déduit pour l'exciton une énergie dégradée de 1,9 eV. Dans CsI les mesures de PHILIPP et TAFT[7]) ne fournissent malheureusement pas de précisions suffisantes sur l'émission d'électrons par excitons pour permettre une comparaison avec nos résultats.

* * *

NaI-composante γ_4.

Nous nous sommes limités dans cette étude à remesurer, pour la composante γ_4, τ en fonction de T pour les durées courtes de la scintillation et à en contrôler la forme exponentielle du déclin. Les résultats donnés dans la fig. 5 se laissent représenter par la loi $\tau = 1/k_1 = (1/s_1)\exp(E_1/kT)$ jusqu'aux températures les plus élevées avec

$$s_1 = 2{,}9 \cdot 10^9\ s^{-1} \quad \text{et} \quad E_1 = 0{,}12\ \text{eV}.$$

Ces valeurs confirment celles mesurées antérieurement[1]) pour le domaine des températures plus basses.

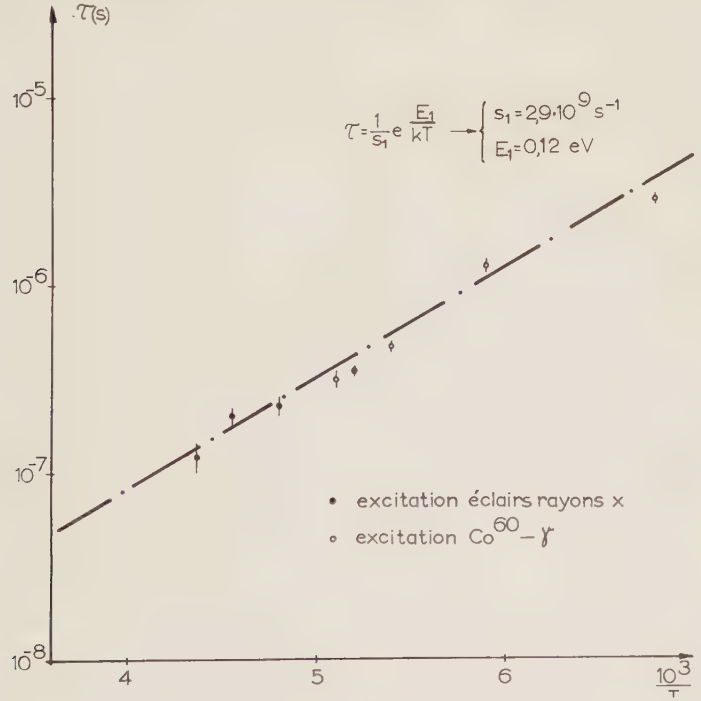


Fig. 5.
NaI composante γ_4.

Il est évident que le résultat $k_2 = 0$, c'est-à-dire l'exclusion d'un processus non radiatif pour le type de centre luminescent responsable de la

composante en question, exigerait, d'après le modèle utilisé, que le rendement η soit constant ($\equiv 1$). Ceci n'est pas confirmé par l'expérience[1]) qui fournit une variation typique $\eta\ (T)$ dont on tire:

$$E_2 - E_1 = 0{,}18\ \text{eV} \quad \text{et} \quad {}^{10}\log \frac{s_2}{s_1} = 4{,}7.$$

La question de savoir comment le modèle doit être modifié pour expliquer ces résultats ne pourra être élucidé que par une étude détaillée du spectre d'émission de la composante γ_4.

Nous aimerions souligner ici que la composante «chaude» de CsI présente également des caractéristiques anormales comparables[2])[4]).

Elle aussi est liée à des défauts de réseau propre qui n'apparaissent qu'après *traitement thermique* du cristal ou après introduction d'éléments étrangers déformant le réseau (Tl, Na)[4]). Nous avons pu, au cours des présents essais, la faire apparaître par simple déformation plastique du cristal pur de CsI. Comme pour γ_4 de NaI, la courbe de rendement — qui peut même présenter un maximum — n'est pas directement compatible, dans le cadre du modèle, avec la variation simplement exponentielle observée pour $\tau(T)$.

En conclusion il apparaît comme probable que les scintillations luminescentes dans les cristaux purs de CsI et NaI soient de deux types différents:

a) Des scintillations correspondant à la recombinaison d'excitons dégénérés, auto-trappés dans le réseau du cristal (par conséquent liées à des défauts non permanents du réseau de base) et pouvant être décrites par un modèle simple de centre luminescent.

b) Des scintillations dûes à la présence de défauts cristallins permanents produits par traitement thermique ou déformation plastique du réseau et dont le comportement ne pourra s'expliquer que par un mécanisme plus complexe.

Nous remercions M. J. A. Monard, candidat physicien, de son aide pour différentes mesures de contrôle. Ce travail a bénéficié de l'appui financier de la Commission Suisse de l'Energie Atomique.

Neuchâtel, Institut de Physique de l'Université.

Bibliographie

[1]) J. Bonanomi et J. Rossel, Helv. Phys. Acta *25*, 725 (1952).
[2]) W. J. Van Sciver, Stanford II. E. P. L., Report No. 38 (1955).
[3]) B. Hahn et J. Rossel, Helv. Phys. Acta *26*, 271 (1953) et Helv. Phys. Acta *26*, 803 (1953).
[4]) H. Knoepfel, E. Loepfe et P. Stoll, Z. Naturforschg. *12a*, 348 (1957).
[5]) W. Martienssen, J. Phys. Chem. Solids *2*, 257 (1957).
[6]) L. Apker et E. A. Taft, Phys. Rev. *82*, 814 (1951).
[7]) H. R. Philipp et E. A. Taft, J. Phys. Chem. Solids *1*, 159 (1956).

L'onde de choc dans un fluide non-monoatomique*)

par **Phrixos Théodoridès**

University of Maryland, College Park, Md. USA

(25. X. 1957)

Summary. With atomic vibration representing the intramolecular processes of non-monatomic fluids, the structure of a normal shock wave is analyzed.

Conservation equations of mass, momentum and energy are set on trimerous viscosity, and specialized for an uni-axial steady flow taken initially as supersonic under stratospheric conditions ($T_1 = 218^0$ K, $p_1 = 0.1$ atm). As to normal shock of varied strength, boundary conditions are calculated for variable enthalpy. Temperature dependency for all physical parameters is based on NBS-Tables (1955), thus including as to enthalpy, the anharmonicity and interaction of periodic modes.

Results of numerical integration are communicated for molecular nitrogen. As compared to Becker's classical figures on air of constant Prandtl-number, it is shown that temperature effects would make about tenfold his shock thickness in the velocity profile, and a broadening of about 42% is found added on account of bulk viscosity from ultrasonic measurements (Zmuda[12]).

I. Introduction

La transmission des ondes élastiques - longitudinales, planes — peut servir à distinguer les fluides complexes de ceux qui sont mono-atomiques. Ainsi convient-il que l'onde soit ou bien:

1° de très faible intensité à fréquence ultrasonique, ou

2° d'intensité finie propagée à vitesse supersonique.

La seconde classe représente l'onde de choc alliée à l'étincelle électrique, à l'explosion chimique ou nucléaire, ou bien à un trouble dans l'écoulement relatif à la propulsion supersonique d'un engin dans un milieu fluide. Ce dernier cas sera poursuivi en exemple typique.

Un engin guidé soit en vol supersonique prononcé à une altitude voisine de la borne pour adhérence de la couche limite à la paroi. Là-haut, le surcroît de la viscosité cinématique d'air — du fait d'un décroît de température et de densité — tend à réduire de beaucoup le nombre de Reynolds (Re) sans affecter sensiblement le produit «Ml» du nombre de Mach (M) par une longueur typique de référence (l) mesurée sur

*) This research is part of an investigation supported by the United States Air Force, through the Office of Scientific Research of the Air Research and Development Command on Contract AF–18 (600)–428.

l'engin. Ainsi, le flux autour d'un obstacle solide peut être laminaire aux valeurs de «Ml» auxquelles correspondrait près du sol un «Re» surcritique.

Le vol stratosphérique à grand «M» et petit «Re» déclenche une forte viscosité de volume[24]) (module: $K = \lambda + {}^2/_3\,\mu$). Celle-ci va de pair avec un temps de relaxation fini. Viscosité de volume et retardement sont les attributs des processus intramoléculaires dégelés par échauffement de choc au sein d'un fluide non-monoatomique.

Tels phénomènes intérieurs sont: 1° Les vibrations quantisées harmoniques des atomes d'une même molécule, ainsi que des effets secondaires anharmoniques et d'interaction entre processus périodiques. 2° La dissociation. 3° Les changements structuraux de liquides. 4° Les réactions chimiques des gaz et des liquides. 5° Des interactions au cas d'activation simultanée de deux ou plusieurs parmi les processus précités.

La présente recherche limite les changements d'état afin de préserver le caractère non-monoatomique du fluide. En outre, il n'est envisagé, en fait de processus intérieurs, qu'un mode propre de vibration, seul à être activé de façon appréciable. Ceci revient à choisir un gaz diatomique à molécule axée (N_2, O_2) ou bien à limiter autrement l'échauffement de façon à n'exciter sensiblement que la plus basse des fréquences propres au cas de molécules triatomiques ou polyatomiques.

II. Les Equations de Base

Pour un écoulement tri-axial d'un fluide isotrope, compressible, visqueux et conducteur de chaleur, nous avons essayé récemment[19])[20])[26]) de fonder les équations du mouvement et de l'énergie sur une viscosité trimère. Or, les matrices symmétrisées pour la vitesse de déformation et la contrainte totale comportent trois paramètres physiques de viscosité, à savoir un coefficient de viscosité linéaire de compression (λ), un coefficient de viscosité tangentielle linéaire (μ) et un troisième pour la viscosité tangentielle quadratique (ν).

L'équation de continuité et les équations précitées sont spécialisées ci-dessous, pour un écoulement uni-axial (en direction $+ x$) et stationnaire ($\partial/\partial t = 0$). La vitesse initiale est supposée supersonique: $u_1 > (\gamma_1 R T_1)^{\frac{1}{2}}$. Les gradients de vitesse et de température sont annullés aux limites: $x_{1,2} = \pm\infty$.

De plus, par élimination du coefficient: $\lambda = K - ({}^2/_3)\,\mu$, la viscosité de volume est représentée par son module: $K = \lambda + ({}^2/_3)\,\mu$.

Les relations fondamentales sont ainsi réduites à ce qui suit:

a) *Equation d'état*

$$p = R T \varrho \tag{1}$$

b) *Contrainte visqueuse*

$$s_{(xx)} = Ku_x + \frac{4}{3}\,\mu u_x + 4\,\nu u_x^2 \tag{2}$$

c) *Contrainte totale*

$$p_{(xx)} = -\,p + s_{(xx)} = -\,RT\varrho + Ku_x + \frac{4}{3}\,\mu u_x + 4\,\nu\,u_x^2 \tag{3}$$

d) *Conservation de masse*

$$d(\varrho u) = 0 \tag{4}$$

par intégration

$$\varrho u = \text{const} = a = \varrho_1\,u_1 = \varrho_2\,u_2 \tag{4a}$$

e) *Conservation de la quantité de mouvement*

$$au_x = -\,p_x + s_{(xx)\,x} \tag{5}$$

Par intégration:

$$au = -\,p + s_{(xx)} + b \tag{5a}$$

En vue des conditions initiales:

$$b = p_1 + \varrho_1\,u_1^2 \tag{5b}$$

puisque $s_{(xx)_{1,2}} = 0$ (écoulement uniforme aux limites).

f) *Conservation d'énergie.*

La compensation de l'énergie dans un champ stationnaire sans sources conduit pour le cas uni-axial à l'équation[19]):

$$kT_{xx} + (k_x - ac_{(\tau)})\,T_x - (au - b)\,u_x = 0 \tag{6}$$

La puissance dissipée par unité de volume est:

$$\Phi = Ku_x^2 + \frac{4}{3}\,\mu u_x^2 + 4\,\nu u_x^3 \tag{7}$$

L'existence et l'unicité d'un front de compression sont vérifiées[11])[14]). Nous supposons le choc assez intense pour inciter une vibration moléculaire à une température de front: $T_{(f)} > 600°$ K. Plus en aval du choc, l'équilibre thermique est rétabli par transmission d'énergie aux degrés de liberté inertes comme celui de vibration. Ceux-ci sont alimentés aux dépens de l'énergie de translation aléatoire (trois degrés de liberté) servant à définir couramment la température du fluide. Partant, il y a refroidissement du fluide en aval du front jusqu'à ce qu'une nouvelle température d'équilibre thermique: $T_2 < T_{(f)}$ soit établie. Nous trouvons ainsi: pour $u_1^2 \ll R\,\gamma_1\,T_1$: $u_1 > u_{(f)} > u_2$, $p_1 < p_{(f)} < p_2$, $\varrho_1 < \varrho_{(f)} < \varrho_2$.

En supposant un équilibre thermique aux deux stations limites: 1 en amont du choc, 2 en aval du choc, l'équation (6) simplifiée exprime la

conservation d'énergie par unité de masse, avec $H = i(T)RT$ pour l'enthalpie et $u^2/_2$ pour l'énergie cinétique externe. Nous obtenons l'équation Rankine-Hugoniot, généralisée pour une enthalpie variable, comme suit:

$$\left\{\frac{u^2}{2} + i(T)\,RT\right\}_x = 0 \tag{8}$$

Par intégration:

$$\frac{u^2}{2} + i(T)\,RT = \frac{c^2}{2} \tag{9}$$

Le terme à la droite de l'équation signifie l'énergie cinétique par unité de masse alliée à une constante d'intégration «c» qui représente physiquement la vitesse d'écoulement dans le vide.

III. Onde de Choc dans l'Azote Moléculaire Conditions Asymptotiques aux Limites

En ce qui concerne les états marginaux des deux côtés de la transmission de choc, l'indice, «1» se rapporte au bord froid, l'indice «2» au bord chaud supposé assez éloigné en aval de la transition pour une stabilité du partage intérieur de l'énergie sur tous les modes activés, inclus la vibration moléculaire.

Le calcul des conditions asymptotiques (1,2) est basée sur: (1). L'uniformité d'écoulement ($u_{x,1} = 0 = u_{x,2}$) et de température $T_{x,1} = 0 = T_{x,2}$ aux limites. (2) L'enthalpie propre non-dimensionnelle (i_1, i_2) et le rapport de chaleurs spécifiques (γ_1, γ_2). Tous les deux sont tirés des Tables NBS en fonction de la température et de la pression. Ces tables sont un important document sur les propriétés thermiques des gaz émanant de leurs spectres et de méthodes de thermodynamique statistique. Ainsi ce monument tabulaire tient compte, en fait d'enthalpie et chaleurs spécifiques, des vibrations et rotations harmoniques quantisées eu égard à l'absorption d'énergie, aussi bien que d'effets secondaires anharmoniques et d'interactions entre les modes périodiques des molécules.

La portée de l'intensité de choc est variée de façon qu'il y ait assez d'échauffement pour activation appréciable de la vibration intramoléculaire, mais que la température atteinte par choc ne permette aux molécules ni dissociation, ni ionisation.

Relations fondamentales

$$u_1 + R\frac{T_1}{u_1} = u_2 + R\frac{T_2}{u_2} \tag{10}$$

$$u_1^2 + 2\,Ri_1\,T_1 = u_2^2 + 2\,Ri_2\,T_2 \tag{11}$$

La relation (10) combine l'équation d'état (1) avec les équations de conservation de masse (4) et de quantité de mouvement (5). L'équation (11) exprime la conservation de l'énergie par rapport aux stations limites (1,2) d'équilibre thermique et d'uniformité d'écoulement.

Pour l'état initial du gaz en amont du choc, des conditions stratosphériques (T_1 = 218° K, p_1 = 0,1 atm) sont fixées. Elles sont combinées avec une série des valeurs numériques données successivement à la température finale (T_2). Les équations (10) et (11) sont résolues pour les vitesses aux limites (u_1, u_2).

Cette méthode de calcul des conditions aux limites pour une enthalpie variable est inspirée de celle initiée par BETHE.

De plus, comme «i» et «γ» dépendent aussi, quoique faiblement de la pression, une méthode itérative fut nécessaire pour obtenir, à partir d'un état initial fixe (T_1, p_1) et d'une température finale T_2, des valeurs asymptotiques des vitesses (u_1 u_2) en accord avec la valeur actuelle de la pression finale p_2. Pour nos conditions et gaz étudiés il y a toutefois une rapide convergence. Une seule itération assurait la coincidence d'une paire de valeurs de p_2, l'une adoptée, l'autre déduite de la première par le calcul.

A titre d'illustration nous réunissons dans la Table A trois exemples (I, III, V) de solutions des équations (10) et (11) pour trois intensités croissantes de choc.

IV. Intégration des Equations de Base Epaisseur des Profils de Vitesse et de Température

Ce plan de recherches sur la structure de la transition de choc se rapporte à divers gaz (azote, oxygène, air, bioxyde de carbone etc.). Pour chacun d'eux l'on prévoit diverses étapes d'échauffement, c'est-à-dire diverses intensités de choc.

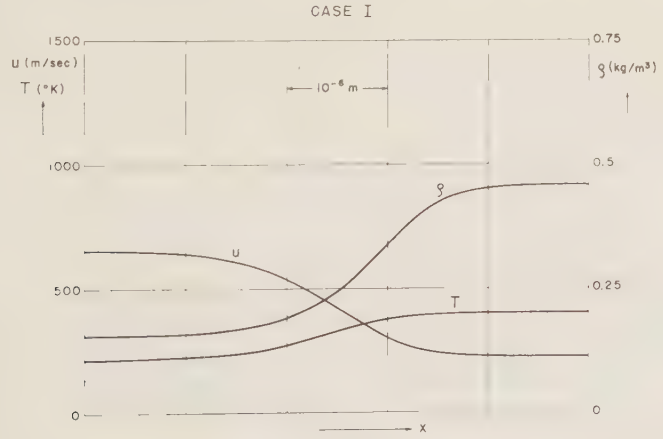


Fig. 1.

Structure d'onde de choc dans l'azote moléculaire.
En amont du choc: $T_1 = 218°$ K $\quad p_1 = 0{,}1$ atm $\quad M_1 = 2{,}176$

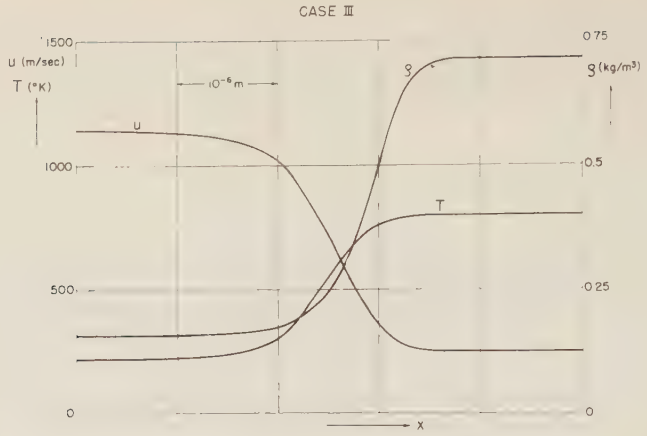


Fig. 2.

Structure d'onde de choc dans l'azote moléculaire.
En amont du choc: $T_1 = 218°$ K $\quad p_1 = 0{,}1$ atm $\quad M_1 = 3{,}793$

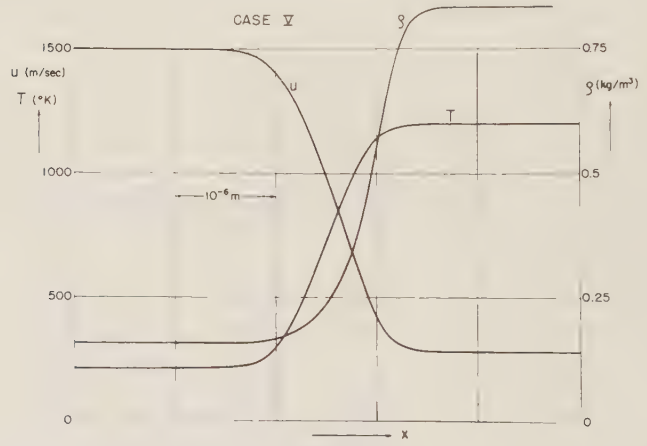


Fig. 3.

Structure d'onde de choc dans l'azote moléculaire.
En amont du choc: $T_1 = 218°$ K $\quad p_1 = 0{,}1$ atm $\quad M_1 = 4{,}987$.

Ainsi cherchons-nous à séparer les processus intérieurs admissibles afin de contribuer à l'analyse et l'interprétation des effets globaux de choc accumulés dans les images Schlieren prises dans les tubes à choc. En troisième lieu nous tâchons de séparer l'influence des paramètres physiques de viscosité (K, μ, ν) sur la structure des profils de vitesse et de température.

Les résultats des intégrations communiqués ci-après ont trait à l'azote moléculaire. En première étape, il n'est pas tenu compte de viscosité

Table A

Onde de Choc dans N_2. Conditions Asympottiques aux Limites.

No.	T_2 °K	$\tau = \frac{T_2}{T_1}$	$i_0 = \frac{H - E_0}{RT_0}$	$v = \frac{u_2}{u_1}$	u_1 m sec^{-1}	u_2 m sec^{-1}	$M_1 = \frac{u_1}{g_1}$	$M_2 = \frac{u_2}{g_2}$	$\frac{p_2}{p_1}$	$\frac{\varrho_2}{\varrho_1}$
I	400	1.8349	5.1250	0.3423	654.94	224.18	2.1762	0.55035	5.3606	2.9215
III	800	3.6697	10.4431	0.2194	1141.65	250.49	3.7934	0.44076	16.7253	4.5577
V	1200	5,5046	16.1970	0.1881	1501.0	282.33	4.9874	0.41042	29.2642	5.3163

Table B

Epaisseurs des Profils de Choc pour Vitesse ($d_{(u)}$) et Température ($d_{(T)}$) dans l'Azote moléculaire

		$K = 0{,}8\,\mu$	$K = 0$		$K = 0{,}8\,\mu$	$K = 0$	
Cas	M_1	$d_{(u,\,K)}$	$d_{(u,\,o)}$	$\frac{d_{(u,\,K)}}{d_{(u,\,o)}}$	$d_{(T,\,K)}$	$d_{(T,\,o)}$	$\frac{d_{(T,\,K)}}{d_{(T,\,O)}}$
I	2.1762	1.682	1.180	1.422	1.569	1.2053	1.307
III	3.7934	1.123	0.7797	1.442	1.012	0.8244	1.237
V	4.9874	1.003	0.6901	1.446	0.9255	0.7548	1.225

nonlinéaire, mais diverses valeurs sont données au rapport K/μ entre le module de viscosité de volume et le coefficient de viscosité ordinaire. Les calculs sont terminés pour deux de ces valeurs à savoir:

1° $K/\mu = 0{,}8$ Valeur tirée des expériences ultrasoniques de ZMUDA[12].
2° $K/\mu = 0$ Valeur basée sur l'hypothèse MAXWELL-STOKES.

L'intégration numérique de nos équations de base s'effectue à l'aide d'un Bendix Digital Differential Analyzer de grande vitesse grâce à l'obligeante autorisation dont nous sommes redevables à ARDC, Data Processing Section. Ce service très précieux pour nos recherches a été confié aux bons soins de leur physicien M. GERHART E. MIX et son groupe du Computation Research Branch à Wright-Field, Dayton, Ohio.

Les résultats donnent en forme tabulaire les fonctions $u(x)$ et $T(x)$. Il est tenu compte de la variation avec la température de tous les paramètres physiques par les nouvelles Tables du NBS[18]).

Une façon d'utiliser les fonctions désormais tabulées est de déterminer les positions et valeurs de leurs extrêmes. Ceux-ci permettent de déterminer les épaisseurs des profils de vitesse et de température à travers les chocs au moyen des formules de Prandtl, à savoir:

épaisseur du profil de vitesse:

$$d_{(u)} = \frac{u_1 - u_2}{|u_x|_{\text{extr.}}}$$

épaisseur du profil de température:

$$d_{(T)} = \frac{T_2 - T_1}{|T_x|_{\text{extr.}}}$$

Nous avons réunis dans Table B les éléments comparatifs de structure des profils à travers les chocs dans l'azote moléculaire.

Il est intéressant de poursuivre dans cette table l'élargissement des profils à cause de la viscosité de volume. Ainsi, aux intensités de chocs considérés, les profils Stokes sont dilatés entre 42,2 à 44,6% pour le profil de vitesse, entre 30,7 à 22,5% pour celui de température.

Les épaisseurs de profils obtenus paraissent être d'un ordre de grandeur comparable à celui des épaisseurs découlant d'expériences récentes en tube de choc.

Il n'est pas facile de comparer directement nos résultats sur l'azote avec les chiffres classiques de BECKER[1]) se rapportant à l'air. Néanmoins, pour un de ses résultats pour lequel les conditions se rapprochent des nôtres, la comparaison indique un rapport de 10:1 entre la nouvelle épaisseur dans l'azote et celle de BECKER dans l'air. Ce rapport est basé sur le maintien de l'hypothèse de STOKES qui était de rigueur du temps de BECKER. Donc l'élargissement du profil dérive des influences de tempé-

rature sur les paramètres physiques en contraste avec le nombre de PRANDTL constant utilisé par BECKER. Et dire que notre épaisseur de profil croît encore de 42% en raison d'une viscosité de volume dont le module $K = 0{,}8\,\mu$ étant tiré de minutieuses expériences ultrasoniques semble être de toute confiance.

Les suivantes étapes de ce plan de recherches se porteront à élucider les effets d'une part de la viscosité non-linéaire et d'autre part de la bosse de relaxation ($T_{(f)}$) dans les cas de plus forte intensité de choc.

V. Conclusions sur la Structure des Profils de Choc pour Vitesse et Température dans l'Azote moléculaire

1° Pour la vitesse et la température, l'épaisseur des profils décroît quand l'intensité du choc augmente. Cette variation est du même ordre de grandeur pour ces deux profils.

2° L'épaisseur de profil est diminuée par l'hypothèse: $K = 0$ (MAXWELL-STOKES).

3° Au profil de vitesse l'écart d'épaisseur dû à $K = 0$ augmente légèrement avec l'intensité du choc. Un surcroît de 130% pour M_1 a augmenté l'écart d'environ 4%.

4° Au profil de température, l'écart d'épaisseur dû à $K = 0$ diminue quand l'intensité de choc monte. Un surcroît de 130% pour M_1 a diminué l'écart d'environ 20,5%.

5° Il y a décalage de position entre $(u_x)_{\text{extr.}}$ et $(T_x)_{\text{extr.}}$ L'extremum du gradient de température est en amont de l'extremum du gradient de vitesse.

6° L'hypothèse de STOKES $K = 0$ semble déplacer en général l'abscisse des gradients maxima en amont de la position qui correspond à $K = 0{,}8\mu$.

Références

[1] BECKER, R., *Stosswelle und Detonation*, Z. Phys. *8*, 321–362 (1922).

[2] ACKERET, J., *Gasdynamik*, dans: *Handbuch der Physik*, Bd. 8, Kap. 5 (1927), S. 289—342.

[3] TAYLOR, G. I. et MACOLL, J. W., *The mechanics of compressible fluids*, dans: *Aerodynamic Theory, Durand, W. F.*, editor, vol. III (1935).

[4] BURNETT, D., *The distribution of molecular velocity and the mean motion in a non-uniform gas*, Proc. London math. Soc. *40*, 382–435 (1935).

[5] LANDAU, L. et TELLER, E., *Zur Theorie der Schalldispersion*, Physik, Z. Sowjetunion *10*, 34–43 (1936).

[6] TISZA, L., *Supersonic absorption and Stokes' viscosity relation*, Phys. Rev. *61*, 531–536 (1942).

[7] BETHE, H. A. et TELLER, E., *Deviation from thermal equilibrium in shock waves*, Ball. Res. Lab. Aberdeen, Rep. No. X-117 (1945).

[8]) Gunn, J. C., *Relaxation time effects in gas dynamics*, R. et M. 2338 (1946).
[9]) Kneser, H. O., *Molekulare Schallabsorption und -dispersion*, Erg. exakt. Naturwiss. *22*, 121–185 (1949).
[10]) Markham, J. I., Beyer, R. T. et Lindsay, R. B., *Absorption of sound in fluids*, Rev. Mod. Phys *23* N° 4, 353–411 (1951).
[11]) Gilbarg, D., *The existence and limit behavior of the onedimensional shock layer*, Amer. J. Math. *73*, 256–274 (1951).
[12]) Zmuda, A. J., *Dispersion of velocity and anomalous absorption of ultrasonics in nitrogen*, J. acoust. Soc. Amer. *23*, 472–477 (1951).
[13]) Meixner, J., *Allgemeine Theorie der Schallabsorption in Gasen und Flüssigkeiten unter Berücksichtigung der Transporterscheinungen*, Acustica *2*, N° 3, 101–109 (1952).
[14]) Germain, P. et Bader, R., *Unicité des écoulements avec chocs dans la mécanique de Burgers*, W. et L. Jb. *1953*, 144–148.
[15]) Gilbarg, D. et Paolucci, D., *The structure of shock waves in the continuum theory of fluids*, J. ration. Mech. Anal. *2*, 617–642 (1953).
[16]) Rosenhead, L. (leader) *et al.*, *A discussion on the first and second viscosities of fluids*, Proc. roy. Soc. London [A], *226*, 16–69 (1954).
[17]) F. D. Rossini, editor, *High speed aerodynamics and jet propulsion*, vol. I; *Thermodynamics and physics of matter* (Princeton 1955).
[18]) Hilsenrath, J. *et al.*, *Tables of thermal properties of gases*, Nat. Bureau of Standards, Nov. 1 (1955).
[19]) Theodorides, Ph. J., *Mehrparametrge Zähigkeit als Grundlage einer Quasi-Kontinuumtheorie der Kompressionsfront für mehratomige Gase*, Z. angew. Math. Mech. Sonderheft, 38–46 (1956).
[20]) Theodorides, Ph. J., *A new governing equation of shock analysis with heat transfer in polyatomic gases*, Bull. Amer. Phys. Soc. [II] *1*, N° 7, 361 (1956).
[21]) Blackman, V., *Vibrational relaxation in oxygen and nitrogen*, J. Fluid Mech. *1*, Part 1, 61–85 (1956).
[22]) Griffith, W., Brickel, D., et Blackman, V., *Structure of shock waves in polyatomic gases*, Phys. Rev. *102*, N° 5, 1209–1216 (1956).
[23]) Burgers, J. M., *Selected topics from the theory of gas flow at high temperatures*, (I) and (II), Inst. Fluid Dyn. & Appl. Math. Univ. of Maryland, Techn. Notes: BN 83, 63 pages (Sept. 1956), and BN 84, 51 pages (Oct. 1956).
[24]) Chapman, D. R., *Some possibilities of using gas mixtures other than air in aerodynamic research*, NACA Rep. 1259, 22 pages (1956).
[25]) Rubin, R. J., et Shuler, K. E., *Relaxation of vibrational non-equilibrium distributions*; I: *Collisional relaxation of a system of harmonic oscillators*; II: *The collisional transition probabilities on the relaxation behavior*, J. Chem. Phys. *25*, 59–74 (1956).
[26]) Theodorides, Ph. J., *A basic approach to shock front analysis*, Techn. Note BN 93, AD-115-099, Inst. for Fluid Dyn. & Appl. Math. Univ. of Maryland, 31 pages (1957).
[27]) Montroll, E. W., et *Shuler*, K. E., *Studies in nonequilibrium rate processes*; I. *The relaxation of a system of harmonic oscillators*, J. Chem. Phys. *26*, N° 3, 454–464 (1957).

Untersuchung von Bortrifluoridkomplexen mit Hilfe der kernmagnetischen Resonanz

von **P. Diehl** und **J. Gränacher**
Phys. Institut der Universität Basel

(17. I. 1958)

Hochauflösende kernmagnetische Resonanz stellt ein ausgezeichnetes Hilfsmittel für die Untersuchung der Struktur und Reaktionskinetik von BF_3-Koordinationskomplexen dar[1]).

Während die Existenz solcher Komplexe schon lange bekannt ist, wurden für deren Struktur verschiedene Hypothesen aufgestellt. HEIN[2]) schlägt das folgende Gleichgewicht vor:



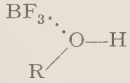
GREENWOOD und MARTIN[3]) bestätigen diese Theorie und messen den Ionisationsgrad zu $\sim 10\%$.

Unsere Messungen im System BF_3-Alkohol zeigen eine von der BF_3-Konzentration abhängige Verschiebung der OH-Protonenresonanzlinie. Die Verschiebung hat ein ausgeprägtes Maximum für das Konzentrationsverhältnis:

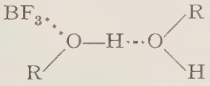
2 Moleküle Alkohol : 1 Molekül BF_3.

Mit den folgenden Annahmen lässt sich die erwähnte Verschiebung erklären:

1. Es existieren im behandelten System zwei verschiedene Alkohol-BF_3-Komplexe:
   a) das Monoalkoholat

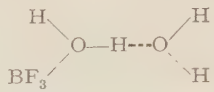


   b) das Dialkoholat



2. Der Dikomplex enthält eine Wasserstoffbrücke.

Analog deutet eine Verschiebung der OH-Protonenresonanzlinie im System H_2O-BF_3 auf die Existenz des Dikomplexes



hin. Durch die Untersuchung der Fluorresonanz eines flüssigen Systems BF_3 $C_2H_5OH-CH_3OH$ stellten wir fest, dass zwischen den Komplexen ein Austausch von BF_3 stattfindet.

Die mittlere Verweilzeit τ eines BF_3-Moleküls im Dialkoholatkomplex beträgt bei Zimmertemperatur

$$\tau = 2{,}1 \cdot 10^{-3} \text{ sec.}$$

Für den Monokomplex wurde bei Zimmertemperatur

$$\tau = 9 \cdot 10^{-5} \text{ sec.}$$

gemessen. Dieser markante Unterschied zeigt quantitativ die qualitativ schon bekannte Tatsache, dass die BF_3-Monokomplexe allgemein weniger stabil sind als die Dikomplexe. τ hängt stark von der BF_3-Konzentration ab.

Die Aktivierungsenergie des die Austauschgeschwindigkeit bestimmenden Schritts beträgt:

$$E_A \sim 7 \text{ kcal./Mol}$$

Im *F*-Spektrum des Systems BF_3-H_2O fanden wir 4 Resonanzlinien. Diese entsprechen den kürzlich von Wamser[4]) zur Aufklärung der Reaktionskinetik vorgeschlagenen Verbindungen

HBF_3OH	$HBF(OH)_3$
$HBF_2(OH)_2$	HBF_4

Das bisher chemisch nicht isolierte Molekül $HBF(OH)_3$ tritt im betrachteten System in relativ sehr geringer Konzentration auf.

Aus dem Kernresonanzspektrum folgt, dass bei hoher BF_3-Konzentration ein rascher Austausch von F zwischen den erwähnten Molekülen stattfindet.

Bei Zimmertemperatur und $(BF_3) = 11{,}4$ Mol/$_l$ beträgt

$$\tau = 1{,}3 \cdot 10^{-3} \text{ sec.}$$

Eine ausführliche Arbeit wird später veröffentlicht. Für die freundliche Unterstützung bei der Durchführung dieser Arbeit sind wir Herrn Prof. Dr. P. Huber zu grossem Dank verpflichtet. Die vorliegende Arbeit wurde durch finanziellen Beitrag des schweiz. Nationalfonds ermöglicht.

[1]) P. Diehl and R. A. Ogg, Jr., Nature *180*, 1114 (1957).
[2]) F. Hein, Chemische Koordinationslehre, Hirzelverlag Zürich, 1950, S. 310.
[3]) Greenwood and Martin, Journal of Chemical Society *75*, 1427 (1953).
[4]) C. A. Wamser, Journal of American Chemical Society *73*, 409 (1951).

Kernniveaus und Schalenmodell

von **Ch. Terreaux**

Seminar für theoretische Physik der Universität Zürich

(6. XI. 1957)

Summary. This is a continuation of a previous paper[1]) concerning a systematic comparison of the experimental low levels of odd nuclei with the one-particle levels predicted by the shell modell. The principles of the graphic representation used in these papers are briefly summarized. All the low empirical levels for the region $N = 13$—81 with Z = even, N = odd are graphically represented. The behaviour of these levels can generally be understood within the framework of the generalized spherical shell model (with configuration mixtures included.) A new discussion of the BETHE-WEIZSÄCKER formula for the binding energy is given. The various contributions to the binding energy are interpreted in terms of the typical parameters of the shell model, like depth and radius of the potential well etc. The constant of the principal term of this formula proportional to A is determined theoretically from the nuclear radius only. The agreement with the empirical value of this constant is excellent. Finally, the nuclear radii are discussed in the light of the shell model.

§ 1. Einleitung

In einer früheren Arbeit[1]) (hier mit I bezeichnet) wurde ein systematischer Vergleich der experimentellen untersten Anregungsniveaus der ungeraden schweren Atomkerne mit den Einteilchenniveaus, wie sie aus dem Schalenmodell folgen, eingehend diskutiert. Zu diesem Zwecke wurde eine Darstellungsmethode der Termschemata eingeführt, deren Grundidee die folgende ist:

Die Parameter der Potentialtöpfe (Tiefe, Radien) die in der Näherung des Schalenmodells benutzt werden, sind gleichmässig variierende Funktionen der Nukleonenzahlen. (Die Neutronenzahl N und die Protonenzahl Z werden als kontinuierliche Variablen betrachtet.) Der Energieeigenwert der Einteilchenniveaus in den Potentialtöpfen ist also auch eine kontinuierliche Funktion der Nukleonenzahlen und diese Niveaus können mit Hilfe einer Folge von regelmässigen Flächen dargestellt werden. Zu jeder Fläche S_{jP} gehört eine „Zuordnung" j^P (gesamtes Drehmoment $j = l \pm \frac{1}{2}$ und Parität P von l) der betreffenden Niveaus. In Fig. 1 sind zwei dieser Flächen skizziert. Sie stellen die Energieeigenwerte der Niveaus $\tau_{jP}(N, Z)$ (positive Richtung nach unten) als Funktion

der Koordinaten N, Z dar. Im Rahmen der Schalenstruktur wird der Verlauf der Ablösungsenergie der Kerne durch die Flächen S_{jP} gegeben. Dem Grundzustand des Kerns entspricht dabei eine kompakte Besetzung

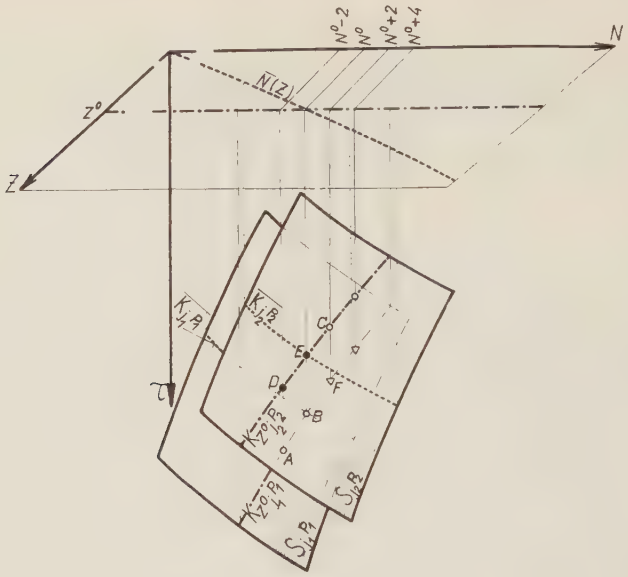


Fig. 1.

Skizze im dreidimensionalen Raum: Energieeigenwert τ (positive Richtung nach unten) als Funktion der Koordinaten: Neutronenzahl N und Protonenzahl Z. Die Figur zeigt zwei verschiedene Einteilchenniveauflächen S_{jP} durch $\tau(N, Z)$ gegeben. $S_{j_2P_2}$ liegt oberhalb $S_{j_1P_1}$. K_{Z^0jP} ist die Schnittlinie von S_{jP} mit einer Ebene $Z^0 =$ konst. (Strich-punktiert).

$\bar{N}(Z)$ liegt in der $N-Z$-Ebene und gibt die mittlere Neutronenzahl der stabilen Kerne, definiert durch die Schwerpunkte der Häufigkeit der stabilen Isotopen. $\bar{K}_{jP}$ ist die Projektion von $\bar{N}(Z)$ auf die Fläche S_{jP} (gestrichelt).

Die Grundzustände der Kerne sind mit ○ bezeichnet. Gewöhnliche angeregte Zustände (höhere Niveaus in der Schalenstruktur) mit ●. Löcherniveaus mit △. Z. B. für die Kerne (Z^0, N^0-2) bzw. (Z^0, N^0) sind A bzw. B der Grundzustand mit Zuordnung ${j_1}^{P_1}$, D bzw. E Anregungsniveau mit Zuordnung ${j_2}^{P_2}$. Mit dem Kern (Z^0, N^0+2) ist das Niveau ${j_1}^{P_1}$ im Grundzustand vollgefüllt. C ist der Grundzustand ${j_2}^{P_2}$, F ein Lochniveau ${j_1}^{P_1}$. $\overline{AD}, \overline{BE}, \overline{CF}$ sind die entsprechenden Anregungsenergien.

der Einteilchenniveaus bis zur Fermienergie. Zur Definition der Ablösungsenergie ist die folgende Wahl des Energienullpunkts geeignet: der Energiewert $\tau_{jP}(N, Z)$ derjenigen Punkte von S_{jP}, die das *oberste* besetzte Einteilchenniveau (Kern im Grundzustand) in den Potentialtöpfen darstellen, wird mit der Ablösungsenergie eines Nukleons für den Kern (N, Z)

gleichgesetzt. Diese Punkte sind in Fig. 1 mit ○ bezeichnet. Wenn der Grundzustand der ungeraden Kerne ein Einteilchenzustand ist, dann ist j^P auch die Zuordnung für den ganzen Kern. Diese Definition von τ legt die Tiefe des Potentialtopfs fest. (Betreffend eine andere Definition von τ, bei der *alle* besetzten Niveaus eine Rolle spielen, vgl. § 3.)

Die übrigen Teile der Flächen S_{jP} enthalten die Einteilchenanregungsniveaus j^P der angeregten Kerne. Mit der obigen Wahl des Energienullpunkts ist dann τ_{jP} die Ablösungsenergie (positiv gezählt) des Kernes im Grundzustand plus oder minus der Anregungsenergie des betreffenden Kernzustandes j^P. Plus gilt für Löcherzustände (Fig. 1, ▽) minus für gewöhnliche Anregungszustände (Fig. 1, ●).

Ein solches System von Kernniveauflächen kann auch unmittelbar aus den experimentellen Daten konstruiert werden. Die qualitative Übereinstimmung im Verlauf dieser theoretischen und experimentellen Flächen bestätigt die Gültigkeit des Schalenmodells. Die Gebiete der experimentellen Flächen S_{jP} die den Grundzuständen mit der Zuordnung j^P entsprechen, werden direkt mit Hilfe der Ablösungsenergien konstruiert (Differenz der gesamten Bindungsenergien von 2 aufeinanderfolgenden Kernen). Die anderen Punkte der Flächen S_{jP}, die den angeregten Niveaus der Kerne entsprechen, lassen sich ebenfalls bestimmen, indem man die Anregungsenergie des betrachteten Zustandes vom Grundzustand des betreffenden Kerns aus aufträgt, in negativer Richtung (nach oben) für gewöhnliche Anregungszustände, in positiver Richtung (nach unten) für Löcherzustände. Ohne irgendwelche theoretischen Begriffe (wie Löcherzustände usw.) zu benutzen, ist das folgende phenomenologische Kriterium dieser Regel im allgemeinen äquivalent (siehe Fig. 1): Man trägt die Anregungsenergie des Niveaus j^P in negativer Richtung auf, wenn die Kerne mit einem Grundzustand derselben Zuordnung j^P, die in der unmittelbaren Umgebung des betrachteten Kerns liegen, eine grössere Nukleonenzahl haben als der betrachtete angeregte Kern. Liegen diese Grundzustände bei kleineren Nukleonenzahlen, so wird die Anregungsenergie in positiver Richtung aufgetragen. Bei Annahme der Schalenstruktur folgen, wenn die Nukleonenzahl stetig wächst, gewöhnlicher Anregungszustand, Grundzustand und dann Löcherzustand in stetiger Weise nacheinander. Diese Zustände liegen auf den Fortsetzungen der Flächenbereiche von S_{jP}, die die Grundzustände enthalten. Es wird sich zeigen, dass diese Fortsetzungen stetig sind.

Um die rechnerische Seite der Arbeit so weit wie möglich zu verkürzen (siehe § 3), wurde in I die Diskussion betreffend den allgemeinen Vergleich der empirischen und theoretischen Einteilchenniveaus auf gewisse mittlere Einteilchenniveaulinien K_{jP} auf den Flächen S_{jP} beschränkt. Diese Kurven K_{jP} entsprechen idealen mittleren Kernen, für die die Neu-

tronenzahl der Mittelwert $N(Z)$ (Fig. 1) der *stabilen* Kerne ist. Tatsächlich lassen sich die theoretischen Niveaus nur für diese mittleren Kerne leicht ableiten, erstens weil nur die Kernradien der stabilen Kerne experimentell bekannt sind, zweitens weil die theoretische Bestimmung (bei der weitgehend interpoliert werden muss) auf der Annahme der gleichmässig langsamen Abhängigkeit der Parameter (Tiefe) der Potentialtöpfe von den Nukleonenzahlen über das ganze periodische System beruht. Letzteres gilt nicht mehr für Kerne, die von den mittleren Kernen abweichen. Insbesondere variiert die Tiefe der Töpfe zwischen den verschiedenen Kernen einer Isobarenreihe beträchtlich.

Der Vergleich hat das Folgende gezeigt: Im grössten Teil des periodischen Systems (d. h. abgesehen vom Gebiet der grössten Einteilchenniveaudichten des sphärischen Schalenmodells, d. h. dem Gebiet der seltenen Erden $N = 90-115$) existiert eine vollkommene Korrespondenz zwischen den experimentellen und theoretischen mittleren Niveaus. Die Approximation der unabhängigen Teilchen im idealen Schalenmodell, bei der die grosse Spinbahnkopplung mitberücksichtigt ist, offenbart sich dadurch, dass die untersten experimentellen mittleren Niveaus $\overline{K}_{jP}$ aus den entsprechenden theoretischen Niveaus durch eine gleichmässige Deformation hervorgehen, was im allgemeinen eine Verkleinerung der Anregungsenergie mit sich bringt. Diese Deformation beruht daher auf der direkten Nukleonenwechselwirkung, die im Schalenmodell als eine Störung behandelt wird, und die Mischungen von Einteilchenzuständen hervorruft. Die letztere hat also im allgemeinen nur eine gleichmässige Deformation der untersten Kernniveauflächen S_{jP} zur Folge. Dies stellt eine Rechtfertigung des Schalenmodells dar. Nur im Gebiet der grössten Einteilchenniveaudichten ($N = 90-115$) wird die Kernstruktur durch die direkte Nukleonenwechselwirkung stark geändert. Dieses Gebiet ist gerade das Anwendungsgebiet der *deformierten Kerne*, für das das sphärische Schalenmodell unbrauchbar wird.

Der Zweck dieser Arbeit ist, die Gesamtheit der experimentellen Einteilchenniveauflächen S_{jP} selbst darzustellen (in I wurde nur ein kleiner Teil reproduziert) und den allgemeinen Verlauf dieser Flächen ausserhalb der mittleren Verteilungslinie $N(Z)$ der stabilen Kerne zu diskutieren.

Im nächsten Abschnitt werden zuerst die Resultate der graphischen Darstellung der Niveaus für die ungeraden schweren Kerne mit ungerader Neutronenzahl im Gebiet $N = 13-82$ ausführlich gegeben. Aus dieser Darstellung geht hervor, dass im allgemeinen die Flächen S_{jP} in diesem Gebiet regelmässig sind.

Ferner wird sich zeigen (§ 3), dass der Verlauf der experimentellen Flächen S_{jP} so ist, dass daraus die bekannten Eigenschaften der Fläche der Bindungsenergie $B(N, Z)$ der Kerne folgen, deren analytische Form

durch die empirische Bethe-Weizsäcker-Formel approximiert wird. Mit der obigen Wahl des Energienullpunkts wird die Lage der Flächen S_{jP} im Prinzip durch die Ableitung der Bindungsenergie $B(N,Z)$ gegeben. Die Ablösungsenergie $\tau_{jP}(N,Z)$ ist ja *auch* der Unterschied zwischen den Gesamt-Bindungsenergien von zwei aufeinanderfolgenden Kernen. Eine Integration der $\tau's$ muss also auf eine Interpretation des Bethe-Weizsäckerschen Ausdrucks der Bindungsenergie durch die typischen Begriffe des Schalenmodells (Topftiefe, Radius) führen. Diese Analyse wird gestatten, die verschiedenen Beiträge zur Kernbindungsenergie für alle Kerne im Sinne des Schalenmodells zu deuten.

Zum Schluss (§ 4) wird eine Verallgemeinerung des Radiusgesetzes für die Kerne im Rahmen des Schalenmodells angegeben.

§ 2. Graphische Darstellung der Kernniveaus

In diesem Abschnitt wird das Resultat der graphischen Darstellung der Niveauschemata der ungeraden schweren Kerne kommentiert. Das Prinzip der Konstruktion, die in I ausführlich beschrieben wurde, ist kurz in der Einleitung wiederholt. Die folgenden experimentellen Daten wurden verwendet:

1. Die Bindungsenergien $B(N,Z)$, nach den Tabellen von Wapstra[2]) und Huizenga[3]).

2. Die Zuordnung j^P der Grundzustände (gesamtes Drehmoment j und Parität P).

3. Anregungsenergien der Niveaus von bekannter Zuordnung j^P[4]).

Hier werden speziell nur die ungeraden schweren Kerne mit einer ungeraden Neutronenzahl N (Z gerade) im Gebiet N 13—82 betrachtet. Aus praktischen Gründen werden statt der Einteilchenflächen S_{jP} die Linien Z - const (K_{Zj^P}, siehe Fig. 1), gegeben. Sie stellen den Energieeigenwert τ_{jP} als Funktion von N für jedes Z und j^P dar. Die Kurven K_{Zj^P} sind Schnittkurven der Fläche S_{jP} mit einer Folge von Ebenen parallel zur τN-Ebene.

Die Ablösungsenergien $\tau_{Nj^P}(N,Z)$ *eines* Neutrons wurden allgemein aus der Bindungsenergie von 2 aufeinanderfolgenden *ungeraden* Kernen (d. h. mit N und $N-2$) bestimmt:

$$\tau_{Nj^P}(N,Z) = 1/2\left\{B_{jP}(N,Z) - B_{jP}(N-2,Z)\right\} \qquad (1)$$

(Der Index N bedeutet die Ionisierung eines Neutrons.) Die Differenz $\triangle N = 2$ wurde in (1) gewählt, um nur gleichartige Kerne (N ungerade) zu vergleichen, was wie wir später sehen werden, wichtig ist. τ_{Nj^P} bestimmt die Flächenanteile von S_{jP}, welche die Grundzustände der Kerne enthalten. Die Anregungsenergien werden von diesen Punkten aus, nach dem in der Einleitung erwähnten Kriterium aufgetragen.

*

Im allgemeinen ist die Zuordnung j^P des Kerns (N, Z) im Grundzustand identisch mit der Zuordnung des Vergleichskerns $(N - 2, Z)$, was beim Aufschreiben von (1) verwendet ist. Es kommt aber für gewisse Werte von N auch der Fall vor, dass der Vergleichskern $N - 2$ in (1) eine verschiedene Zuordnung $j'^{P'}$ besitzt. Im Schalenmodell entsprechen diesen Werten von N im allgemeinen Kerne (N, Z) für welche gerade ein neues Einteilchenniveau j^P mit nur *einem* Neutron besetzt wird. (Im Kern $N - 2$ enthält dann das vorherige Niveau $j'^{P'}$ ein Neutron-Loch.) In (1) ist dann $B_{jP}(N - 2)$ durch $B_{j'P'}(N - 2)$ zu ersetzen, wo $j'^{P'}$ die Zuordnung des Grundzustands von $(N - 2)$ ist. Es treten dann die typischen Sprünge der Ablösungsenergie beim Wechsel der Zuordnung der Grundzustände auf. (Siehe (I) Fig. 5 für die mittleren Niveaus K_{jP}). Die so verallgemeinerte Definition (1) würde deshalb in diesen Punkten Unregelmässigkeiten im Verlauf der Kurven K_{Zj^P} mit sich bringen. Diese sind besonders sichtbar für die Kerne mit $N =$ magisch $+ 1$ (in (1) kommt dann $N =$ magisch $+ 1$ und $N - 2 =$ magisch $- 1$ vor.) In den Fällen wo die Kurven K_{Zj^P} eine magische Zahl von N durchlaufen (z. B. $N = 28$) würden diese Kurven einen wesentlichen Sprung bei $N =$ magisch $+ 1$ haben. Um diese Unstetigkeiten zu vermeiden, wurden die Lagen der Grundzustände der Kerne: $N =$ magisch $+ 1$, $Z =$ gerade, dadurch bestimmt, dass die Kurven K_{Zj^P} im Punkte $N - 1$ interpoliert wurden. In diesem Sinne sind *alle* Grundzustände der Kerne für $N = 21$, 29 und 51 systematisch korrigiert.

In allen andern Fällen wo (1) im Gebiet $N = 21$—82 auf den Vergleich von 2 Kernen mit verschiedenen j^P führt, wurde die Definition (1) trotzdem verwendet (die Unstetigkeiten sind dann kleiner). Dies wurde gemacht, um die experimentellen Daten so weit wie möglich unmittelbar zu benutzen.

Für die Grundzustände der leichteren Kerne, soweit sie hier betrachtet sind ($N = 13$—19), muss eine etwas andere Definition der Ablösungsenergien $\tau_{Nj^P}(N, Z)$ verwendet werden: τ ist definiert mit Hilfe der Tangente der Kurve $Z =$ const. auf dem Flächenstück $B_{jP}(N, Z)$ im Punkte N. (Wegen der Schalenstruktur soll die Fläche der Bindungsenergie $B(N, Z)$ aus einer Folge von regelmässigen stetigen Flächenstücken $B_{jP}(N, Z)$ bestehen, die jeweils durch die entsprechende Einteilchenzuordnung j^P charakterisiert sind. $B_{jP}(N, Z)$ entspricht dem Flächenanteil von S_{jP}, der die Grundzustände enthält.) Für dieses Gebiet wäre aber die Definition (1) nicht mehr ein gutes Mass für die Ablösungsenergie des *letzten* Neutrons. Dies kommt daher, dass die Krümmung der Bindungsenergiefläche für die leichteren Kerne grösser ist. Die Änderung der Bindungsenergie von 2 aufeinanderfolgenden ungeraden Kernen (N, Z) und $(N - 2, Z)$ ist hier wesentlich grösser als die Ablösungsenergie,

die wir mit Hilfe der Tangente der Kurve Z = const. auf der Fläche B_{j^P} (N, Z) im Punkte N erhalten. Die Definition (1) würde ein abnormales Sinken der Kurven $K_{Z j^P}$ verursachen*).

Die Darstellung der experimentellen Niveauschemata, wie sie oben beschrieben ist, ist für das Gebiet $N = 13$–82 in Fig. 2 gegeben. Dieses Gebiet ist das interessanteste, denn es enthält den grössten Teil der hier betrachteten experimentellen Daten, während für grössere N-Werte der Mangel an bekannten Bindungsenergien (Gebiet der seltenen Erden) uns zwingt, die Kurven $K_{Z j^P}$ in vielen Fällen zu interpolieren. Die mittleren Niveaulinien K_{j^P} der Fig. 5 (I), oberer Teil, sind unmittelbar aus Fig. 2 bestimmt worden. Ein Teil der $K_{Z j^P}$ war auch schon in (I) Fig. 3 reproduziert (für $j^P = 9/2^+$, $5/2^+$ im Gebiet $N = 35$–65).

Die hier verwendeten Bezeichnungen für die gemessenen Niveaus sind dieselben wie in I. Sie sind in der Legende der Fig. 2 zusammengefasst. Die besonders bezeichneten Punkte (● gewöhnlich angeregte Zustände — höhere Niveaus in der Schalenstruktur — ○ Grundzustände, ▽ Löcher) geben ausschliesslich die Niveaus mit *gemessenen* Zuordnungen j^P an. Es gibt noch eine gewisse Anzahl Kerne, die hier mit ⧖ bezeichnet sind, für welche nur die Ablösungsenergie des Grundzustandes, aber nicht j^P, bekannt ist, und für die j^P durch Interpolation bestimmt sind. Diese Kerne wurden mitbenutzt, um die regelmässigen Kurven $K_{Z j^P}$ zu konstruieren.

In der Mitte der Schalen $7/2^-$ und $9/2^+$ ist der tatsächliche Spin der Grundzustände um 1 kleiner als der theoretische Wert, der aus dem Schalenmodell folgt. (Z. B. für die Schale $7/2^-$ $N = 25$ ist der Grundzustand $5/2^-$, ebenso für die Schale $9/2^+$, in der Nähe von $N = 45$, ist der Grundzustand $7/2^+$.) Dies bedeutet, dass die erste Näherung des Schalenmodells (freie Nukleonen, mit Spinbahnkopplung) hier ungültig wird, und dass Mischungen von Einteilchenzuständen vorkommen. Diese gemischten Niveaus sind in Fig. 2 zusammen mit den Kurven $(j \quad 1)^P$ (eingerahmte Bezeichnungen) gegeben. Die theoretischen Zustände $7/2^-$ bzw. $9/2^+$, die den Grundzustand darstellen sollten, sind in diesem Falle leicht angeregt.

Allgemeine Diskussion der Niveaulinien $K_{Z j^P}$

Ein Blick auf Fig. 2 zeigt, dass die Kurven $K_{Z j^P}$ als Funktion von N im allgemeinen stetige, glatte Kurven sind. Die Einteilchenniveaus treten, wenn wir entlang dieser Kurven im Sinne wachsender Neutronenzahl fortschreiten, im allgemeinen in der Reihenfolge als gewöhnliche

*) Dieses Sinken der Niveaus (in den Potentialtöpfen) im Gebiet der leichteren Kerne, ist in Fig. 5 (I) für das erste mittlere Niveau $K_{3/2+}$ angegeben. Fette Kurve: aus $K_{Z j^P}$ mit korrigierten Ablösungsenergien konstruiert, strichpunktierte Linie: aus den $K_{Z j^P}$ mit Ablösungsenergien τ_N (1).

Zustände, dann als Grundzustände und Löcher auf. Dies ist eine Eigenschaft der idealen Schalenstruktur.

Die Gesamtheit der Kurven $K_{Z_j P}$ (Fig. 2) zerfällt in verschiedene Kurvengruppen: In einem gewissen zusammenhängenden Bereich der N-Achse, haben die verschiedenen $K_{Z_j P}$ die zur selben Zuordnung j^P und verschiedenen Z gehören, eine ähnliche Form. Sie verlaufen im allgemeinen ungefähr parallel mit gleichen Abständen. Wir erhalten auf diese Weise Gruppen von Niveaulinien $K_{Z_j P}$ Jede Gruppe ist durch ein bestimmtes j^P charakterisiert, und entspricht einem bestimmten Einteilchenniveau j^P. Dagegen kommen typische Sprünge zwischen diesen Gruppen vor, insbesondere zwischen 2 Gruppen die durch eine magische Zahl von N getrennt sind.

Auch die verschiedenen experimentellen Niveauflächen S_{j^P} der ungeraden Kerne, die durch die $K_{Z_j P}$ dargestellt sind, sind stetig, und die verschiedenen Flächen die zu verschiedenen Niveaus gehören, sind voneinander gut getrennt, besonders wenn 2 Flächen eine magische Zahl überbrücken. (In I sind die entsprechenden mittleren Niveaulinien $\bar{K}_{j^P}$ getrennt.) Für die untersten Anregungsniveaus des Gebietes $N = 13$—82 bleibt also im allgemeinen die Stetigkeit der Niveauflächen S_{j^P} trotz der direkten Nukleonenwechselwirkung erhalten. Dies ist eine Rechtfertigung der Schalenstruktur.

Die Unregelmässigkeiten im Verlauf von $K_{Z_j P}$

Die oben genannte Stetigkeit der $K_{Z_j P}$ ist ein allgemeiner Zug unserer Darstellung, doch kommen auch gewisse Unregelmässigkeiten vor, die wir jetzt diskutieren. Die Unregelmässigkeiten der Kurven $K_{Z_j P}$ für $Z = 52$, 54 und 56 (Fig. 2) rühren nicht von der Tatsache her, dass in einer Folge von Grundzuständen $3/2^+$ plötzlich ein Grundzustand $1/2^+$ bei $Z = 54$ $N = 75$ und $Z = 56$ $N = 77$ vorkommt (Sprung auf eine andere Fläche S_{j^P} an diesen Stellen). Diese Kerne mit der Zuordnung $1/2^+$ im Grundzustand haben eine abnormal grosse Bindungsenergie, die wesentlich grösser ist als der Abstand zwischen den Flächen $S_{3/2^+}$ und $S_{1/2^+}$ in diesen Punkten. Tatsächlich ist der Unterschied zwischen dem experimentellen Grundniveau $1/2^+$ und dem Grundniveau, das wir erhalten würden, wenn das Flächenstück $B_{3/2^+}$ in diesen Ausnahmepunkten regelmässig wäre, von der Grössenordnung 0,3 MeV also 10mal grösser als die Anregungsenergie des Niveaus $3/2^+$. Die im Gebiet $N = 70$—82 vorkommende Unregelmässigkeit hat einen andern Grund: Wir sind hier in dem ersten Gebiet, in dem nach dem sphärischen Schalenmodell sehr grosse Einteilchenniveaudichten auftreten, wodurch Änderungen in der Kernstruktur hervorgerufen werden können. (Mischungen von Einteilchenniveaus, erstes Anwendungsgebiet der deformierten Kerne.) Eine

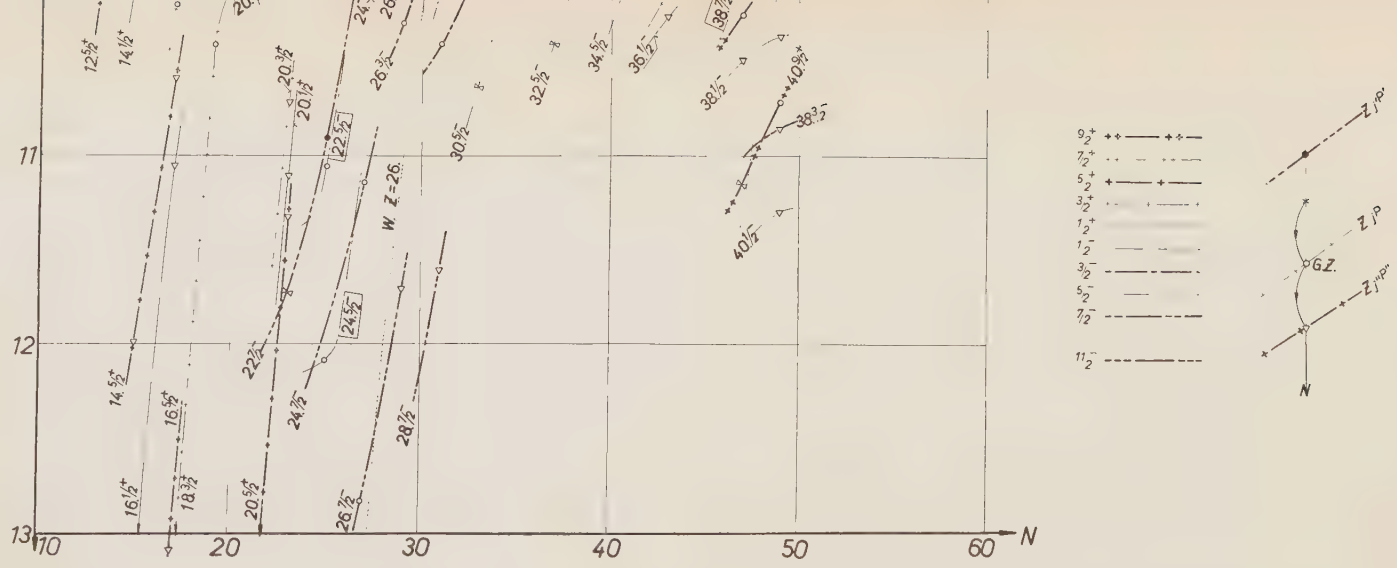


Fig. 2.

Die empirischen Linien K_{Zj^P} (Z — konst.) der Einteilchenniveauflächen S_{j^P} für die ungeraden Kerne: (N *ungerade*, Z *gerade*). K_{Zj^P} ist mit Hilfe des Energieeigenwertes $\tau_N(N, Z)$ als Funktion der Neutronenzahl N in der Ebene τ_N, N dargestellt. Die verschiedenen Kurven K_{Zj^P} sind mit den Werten von Z_{j^P} bezeichnet.

Der Kerngrundzustand mit gemessener Zuordnung ist mit ○ bezeichnet, und ist im allgemeinen durch $\tau_{Nj^P}(N, Z)$ Formel (1) gegeben. Systematische Korrektionen nur für die Neutronenzahlen $N = 13$—19, 21, 29 und 51. (Siehe § 2.) •: gewöhnliches angeregtes Niveau. △: Lochniveau. ɣ: bezeichnet Kerne für welche nur die Ablösungsenergie aber nicht die Zuordnung experimentell bekannt ist (j^P durch Interpolation bestimmt). Kern (N, Z) rechts unten: Grundzustand j^P mit einem gewöhnlichen angeregten Niveau $j'^{P'}$ und Lochniveau $j''^{P''}$.

Die eingerahmten Bezeichnungen $Z(j-1)^P$ ($5/2^-$ bzw. $7/2^+$) im Gebiet $N \sim 25$ bzw. 45 stellen gemischte Niveaus dar, die in der Mitte der Schalen $j^P = 7/2^-$ resp. $9/2^+$ vorkommen. Die punktierte Linie $W.\ Z = 26$ bzw. $W.\ Z = 40$ ist die theoretische mittlere Ablösungsenergie Z = konst. ($Z = 26$ bzw. 40) nach (4) als Funktion von N (entspricht der Mittellinie $\bar{K}_Z$ gemittelt über die Zuordnung j_P der empirischen Linien K_{Zj^P}).

T_N (Mev).
$B(N,Z) - B(N-2,Z)$
W. Z=40.

Zuordnung zwischen den experimentellen Niveauschemata und den Vorhersagen des sphärischen Schalenmodells bleibt noch möglich, obwohl die Werte der Quadrupolmomente schon in diesem Gebiet wesentlich grösser sind als die Einteilchenwerte.

Neben den obigen Unregelmässigkeiten zeigt Fig. 2 noch eine andere Art von Unregelmässigkeit im Verlauf der K_{Z_jP}. Wenn Z = magisch ist, wächst die Anregungsenergie der angeregten Niveaus besonders stark in der Nähe einer magischen Zahl von N, was gewisse anomale Annäherungen, manchmal auch Kreuzungen der Kurven K_{Z_jP} und $K_{(Z-2)_jP}$ verursacht. Siehe in Fig. 2 z. B. den Verlauf von $K_{50^{11}/_2}$- gegenüber $K_{48^{11}/_2}$- im Gebiet $N \sim 66$. Dieselbe Situation wiederholt sich für $K_{28^1/_2}$-, das die Kurve $K_{26^1/_2}$- ($N \sim 31$) zu kreuzen scheint und für $K_{20^3/_2}$- und $K_{18^3/_2}$- ($N \sim 20$). In diesem letzten Fall ist die Anomalie weniger ausgeprägt. Dies ist das Analogon der Zunahme der Anregungsenergien in der Nähe von N – magisch. (Vergleiche in Fig. 2 besonders die Niveaus $K_{Z^{11}/_2}$- vor $N = 82$ (Grundzustand $3/2^+$) und $K_{Z\,1/_2}$- vor $N = 50$ (Grundzustand $9/2^+$). Wir sehen also, dass die Anregungsenergien wesentlich erhöht werden, wenn eine Schale für beide Nukleonenarten genau voll ist*).

Zusammenfassend kann man sagen: Im Gebiet $N = 13-82$ sind die Kernniveauflächen S_jP für die ungeraden Kerne mit N ungerade im allgemeinen regelmässig. Zusammen mit den Resultaten von I, zeigt sich also, dass die direkte Wechselwirkung zwischen den Nukleonen, die im verallgemeinerten Schalenmodell als eine Störung behandelt wird, die die Einteilchenzustände mischt, im allgemeinen nur kontinuierliche Deformationen der Niveauflächen S_jP mit sich bringt. Aber für eine magische Zahl der Nukleonen sind diese Deformationen unregelmässig und grösser, obwohl eine Korrespondenz mit den Vorhersagen des Schalenmodells in diesem Gebiet noch in befriedigender Weise möglich ist.

Wir wollen noch kurz den Fall betrachten, wo die Lage der Grundzustände mit Hilfe der gewöhnlichen Definition der Ablösungsenergien (aus der Bindungsenergie benachbarter Kerne $\Delta N = 1$) bestimmt sind:

$$\tau'_N = B(N, Z) - B(N-1, Z)\,. \tag{2}$$

Wir vergleichen also hier die Bindungsenergien von Kernen verschiedener Eigenschaften, und die so berechneten Lagen der Grundzustände werden von den τ_N (1) im Mittel um eine Paarungsenergie abweichen. Die letzteren sind aber wesentlich von N (für Z – konst.) abhängig: 1,5 MeV im Durchschnitt mit Maxima für N-Werte, die vollgefüllten Schalen entsprechen. Fig. 3 gibt die Kurven K_{Z_jP} der Fig. 2 für das Gebiet N – 50–82 wieder, wenn (2) benutzt ist. Die Unregelmässigkeiten der

*) In I wurde schon gezeigt, dass für fast doppelmagische Kerne die direkte Nukleonenwechselwirkung eine kleine Rolle spielt.

Paarungsenergien zeigen sich im Verhalten der K_{Zj^P} und das ganze Kurvensystem ist, mit Fig. 2 verglichen, um 1,5 MeV nach oben versetzt. Für die Stetigkeit der experimentellen Niveauflächen S_{j^P} ist also wesentlich,

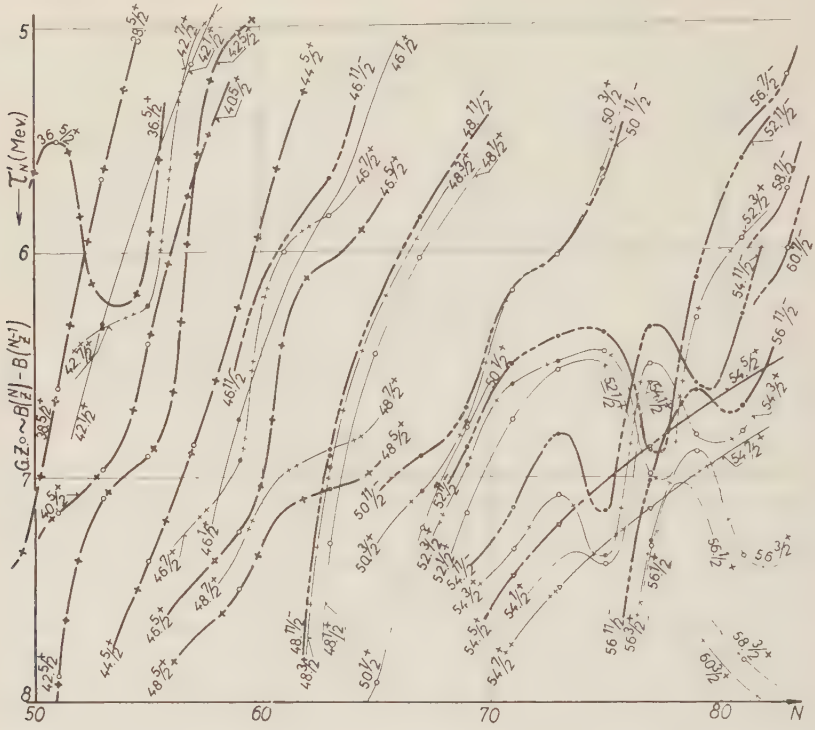


Fig. 3.

Die Linien K_{Zj^P} (Z = konst.) der Einteilchenniveauflächen S_{j^P} für die ungeraden Kerne: (N ungerade, Z gerade). Dasselbe wie Fig. 2 für die Kerne $N = 50$ bis 82, aber der Grundzustand der Kerne ist hier mit Hilfe von τ'_N, Formel (2), bestimmt. Die starke Abhängigkeit der in (2) vorkommenden Paarungsenergie als Funktion der Neutronenzahl N äussert sich im Verlauf der K_{Zj^P}. Gleiche Linien- und Punktebezeichnung wie in Fig. 2.

dass in der Definition der Ablösungsenergien nur Kerne mit denselben Eigenschaften (ungerade Kerne mit derselben Zuordnung j^P) verglichen werden.

§ 3. Bindungsenergie im Rahmen des Schalenmodells

Die Kurven K_{Zj^P} die den Verlauf der Kernniveaus von bestimmter Zuordnung j^P für eine Reihe von Isotopen als Funktion von N angeben, steigen für wachsende N-Werte. Ausserdem können wir die entsprechenden Kurven K_{Nj^P} für eine Reihe von Isotonen als Funktion von Z für

die ungeraden Kerne mit ungerader Protonenzahl konstruieren. Sie haben einen ähnlichen Verlauf, nur sind die Neigungen der Kurven etwa 2,5mal grösser. Dieses Verhalten entspricht dem bekannten Verlauf der Fläche der *Bindungsenergie* $B(N, Z)$, die wir in diesem Abschnitt eingehend diskutieren.

Wegen der Schalenstruktur ist die Fläche der Bindungsenergie $B(N,Z)$ unregelmässig, und besteht aus einer Folge von im allgemeinen glatten Flächenstücken $B_{jP}(N, Z)$, die jeweils durch die Zuordnung j^P der entsprechenden Kerne im Grundzustand charakterisiert sind. Dazu kommen noch die in § 2 erwähnten Unregelmässigkeiten hinzu, die von der Änderung der Kernstruktur in gewissen Bereichen des periodischen Systems verursacht werden. Es kann deshalb nicht in Frage kommen, einen einigermassen strengen analytischen Ausdruck für die Bindungsenergie der ungeraden Kerne über das ganze periodische System hinweg zu finden. Wir werden uns in diesem Abschnitt auf Mittelwerte über die verschiedenen Zuordnungen j^P beschränken, d. h. die Schalenstruktur wird nicht im einzelnen berücksichtigt. Insbesondere werden die verschiedenen Linien K_{Zj^P} für eine bestimmte Reihe von Isotopen Z (verschiedene j^P) durch eine mittlere Kurve K_Z ersetzt werden, die durch die Mitte des Bereichs der Grundzustände j^P läuft und die verschiedenen K_{Zj^P} kreuzt. Damit sind alle Punkte des ganzen Bogens von K_Z durch eine *mittlere* Ablösungsenergie τ_N bestimmt. Für diese lässt sich dann wohl eine analytische Form finden.

Die analytische Form der mittleren Fläche der Bindungsenergie $B(N,Z)$ ist z. B. durch die semi-empirische Bethe-Weizsäckersche Formel gegeben:

$$B_w = \alpha A - \beta \frac{(N-Z)^2}{A} - \gamma A^{2/3} - \delta \frac{Z(Z-1)}{A^{1/3}} \qquad (3)$$

$$\delta = \frac{3}{5}\frac{e^2}{R_0} - 0{,}80 \text{ MeV} \qquad R_0 = 1{,}08 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$$

Für die Coulomb Energie (letztes Glied von (3)) ist eine homogene Dichteverteilung der Protonen innerhalb einer Kugel mit dem elektrischen Radius $R_{el} = R_0 A^{1/3}$ (nach HOFSTÄDTER[5]) angenommen. α, β, γ sind Konstanten*).

Üblicherweise werden die Konstanten α, β, γ durch Anpassung der *mittleren* experimentellen und berechneten Ablösungsenergie B/A eines Nukleons über das ganze periodische System bestimmt. Diese Konstantenwerte beziehen sich auf die mittleren stabilen Kerne. In dieser Arbeit

*) Mit der neuen Wahl von R_0 sind natürlich diese Konstanten anders zu wählen als üblich.

wird mehr verlangt werden: die aus der empirischen Formel (3) berechnete mittlere Ablösungsenergie der Kerne

$$\begin{aligned} \tau_N(N,Z) &= B_w(N,Z) - B_w(N-1,Z) \\ &\cong \alpha - \beta\left[1 - \frac{4\,Z^2}{A(A-1)}\right] - \frac{2}{3}\frac{\gamma}{A^{1/3}} + \frac{\delta}{3}\frac{Z(Z-1)}{A^{4/3}} \\ \tau_Z(N,Z) &- B_w(N,Z) - B_w(N,Z-1) \\ &\cong \alpha - \beta\left[1 - \frac{4\,N^2}{A(A-1)}\right] - \frac{2}{3}\frac{\gamma}{A^{1/3}} + \frac{\delta}{3}\frac{Z(Z-1)}{A^{4/3}} - 2\,\delta\frac{Z-1}{(A-1)^{1/3}} \end{aligned} \tag{4}$$

muss die wirkliche Ablösungsenergie eines Nukleons für *alle* möglichen Kerne approximieren. Insbesondere muss (4) den Verlauf der mittleren Ablösungsenergiefläche auch ausserhalb der Verteilungslinie $N(Z)$ (Fig. 1) der stabilen Kerne wiedergeben. Wir werden die Konstanten α, β, γ so bestimmen, dass wir zuerst nur die Gesamtheit der *mittleren* stabilen Kerne heranziehen. Dann werden wir verifizieren, dass die Ablösungsenergie (4) mit den so erhaltenen Konstanten, auch wirklich die empirische Ablösungsenergie *aller* Kerne (auch ausserhalb von $\bar{N}(Z)$) approximiert. Ausserdem werden wir den Wert von α auch rein theoretisch bestimmen. Die Übereinstimmung mit dem semi-empirischen Wert ist ausgezeichnet.

Bevor wir die Konstanten bestimmen, wollen wir zuerst die allgemeine Form der empirischen Formel (3) im Rahmen des Schalenmodells begründen. Zu diesem Zweck werden wir 2 verschiedene Definitionen für die Potentialtöpfe des Schalenmodells benutzen. Diese wurden schon in früheren Arbeiten beschrieben und werden hier kurz gegenübergestellt. Wir nehmen 2 verschiedene kugelsymmetrische Potentialtöpfe mit schiefen Wänden $V_N(r)$, $V_Z(r)$ für die Neutronen bzw. Protonen an. Diese sind mit Hilfe der folgenden 3 Parameter bestimmt: Radius, Neigung der Wände und Tiefe (siehe Fig. 4 rechts). Die Radien werden gemäss den letzten Messungen von HOFSTÄDTER[5]) festgesetzt. (Diese beziehen sich allerdings auf den elektrischen Radius.) Für die äussere Kante der Töpfe nehmen wir an:

$$R_k = (1{,}08\,A^{1/3} + 2{,}4)\cdot 10^{-13}\ \text{cm} \tag{5}$$

Hierbei ist noch die endliche Reichweite der Kernkräfte durch die additive Konstante berücksichtigt. In Übereinstimmung mit den Resultaten von Hofstädter wurde die Dicke a der „Potentialoberfläche" konstant gewählt: $a = 2{,}9\cdot 10^{-13}$ cm. (Siehe Fig. 4 rechts.) Die Tiefe der Potentialtöpfe (hier mit V_N^0 bzw. V_Z^0 bezeichnet) ist indirekt festgesetzt.

In I[1]) und im ersten Teil dieser Arbeit sind die V^0 so bestimmt, dass die Energie des *obersten besetzten Niveaus* bei kompakter Besetzung die

Ablösungsenergie darstellt und die mittleren experimentellen und theoretischen Ablösungsenergiekurven über das ganze periodische System zusammenfallen. *Das Schalenmodell setzt dann* V^0 *fest.* V^0 wurde nur für die idealen mittleren Kerne $N(Z)$ bestimmt. Dabei sind die V_N^0 und V_Z^0 als langsam veränderliche Funktionen der Nukleonenzahlen angenommen.

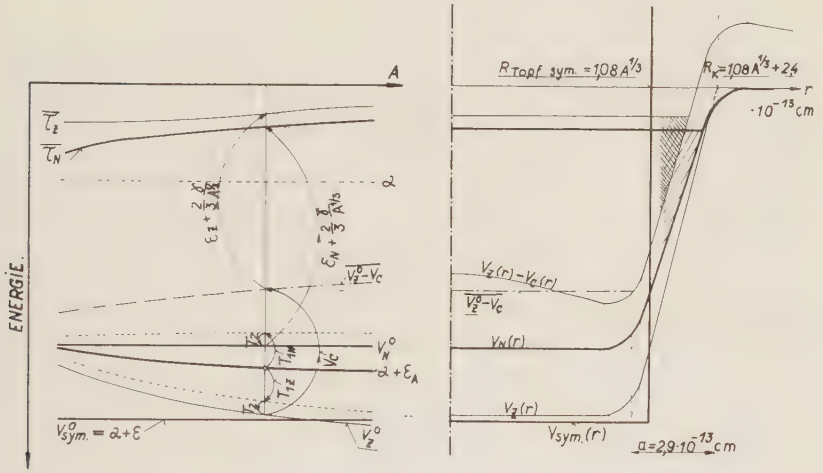


Fig. 4.

Rechts: Das Potential der Kernkräfte nach dem Schalenmodell: $V_N(r)$ bzw. $V_Z(r)$ für die Neutronen bzw. Protonen als Funktion des Radius r. $V_c(r)$ = gesamte Coulombenergie eines Protons im Kernfeld mit homogener elektrischer Dichteverteilung. V_N^0, V_Z^0: Topftiefe. $\overline{V_Z^0-V_c}$: Mittelwert der Kernkräfte und elektrischen Kräfte (18) auf ein Proton (strich-punktierte Linie). Index: sym. bezeichnet den idealen symmetrischen Kern mit konstanter Ablösungsenergie α. a = „Dicke" der Potentialoberfläche. Die Schraffierungen zeigen die Grenze des Topfgebietes in dem sich die besetzten Niveaus befinden.

Links: Skizze der verschiedenen Beiträge zu den Kernpotentialen als Funktion der Teilchenzahl A für die idealen mittleren Kerne durch $\overline{N}(Z)$ Fig. 1 gegeben. $\overline{\tau}_Z$, $\overline{\tau}_N$ = mittlere empirische Ablösungsenergie eines Neutrons bzw. Protons. ε_A, ε_N, ε_Z: kinetische Fermienergie nach Formeln (7), (7′). ε: Fermienergie des symmetrischen Kerns (9). T_1, T_2 sind die Ausdrücke (16′).

V^0 ist gleich der kinetischen Grenzenergie plus die Ablösungsenergie. Bei der Ionisation des letzten Nukleons sind also Radius und Tiefe des Potentialtopfs festgehalten.

In diesem Modell, hier mit M. I. bezeichnet, stellen die Töpfe $V_N(r)$ bzw. $V_Z(r)$ eine Art effektives Potential dar, das auf ein sich im Topf frei bewegendes Neutron bzw. Proton wirkt. Im Laufe einer Ionisation bleibt dieses Potential für das ionisierte Teilchen noch (bis zur endgül-

tigen Entfernung) bestehen. Dagegen bleibt das Potential für die restlichen Nukleonen (Kerninneres) nicht mehr „self-consistent", sobald das ionisierte Nukleon vom Kern entfernt ist (die Grösse der Töpfe hängt natürlich von der Nukleonenzahl ab). In diesem Modell ist die gesamte Bindungsenergie eines Kerns gleich der Summe der sukzessiven Ablösungsenergien τ der verschiedenen Kerne die im Laufe der Ionisierung vorkommen.

In einer älteren Arbeit[6]) wurde schon eine andere Definition der V^0 benutzt: Die V^0 sind so bestimmt, dass die Summe der Energieeigenwerte aller Nukleonen eines Kerns, berechnet nach dem Schalenmodell, im Mittel gleich ist der *gesamten* experimentellen Bindungsenergie B dieses Kerns, mit der Nebenbedingung: die obersten besetzten Niveaus in den Töpfen für die Neutronen bzw. Protonen, müssen *im Mittel* für das ganze periodische System der Stabilitätsbedingung für den β-Zerfall genügen.

Die Rechnungen im Rahmen dieses Modells, hier mit M. II bezeichnet, haben gezeigt, dass das oberste besetzte Einteilchenniveau der Töpfe aller mittleren stabilen Kerne im Grundzustand fast beim Energienullpunkt liegt. Es ist hauptsächlich dieses Resultat, das wir brauchen, wenn wir das Modell II benutzen*). Die Ablösungsenergie eines Nukleons ist hier im wesentlichen gleich der Änderung der Summe der Energieeigenwerte *aller* Nukleonen der Kerne vor und nach der Ionisierung. Diese Änderung ist bedingt durch die Abnahme des *Kernradius*, und daher des Fassungsvermögens, des ionisierten Kerns. Wir bemerken, dass der Potentialtopf hier schon an die Teilchenzahl des ionisierten Kerns angepasst werden muss, wenn das ionisierte Teilchen sich noch im Wirkungsbereich der Kernkräfte befindet. Wenn wir von diesem Modell II Gebrauch machen, wird immer angenommen, dass das oberste besetzte Niveau der stabilen Kerne auf der Nullinie der Energie liegt. Die Ablösungsenergie eines Nukleons ist also genau gleich der Änderung der Summe der Energieeigenwerte aller Nukleonen vor und nach der Ionisierung. Falls dasselbe Gesetz für den Materieradius in *beiden* Modellen benutzt wird, gilt für die Topftiefen in den beiden Modellen:

$$\begin{aligned} (V_N^0)_{\text{Mod. I}} &\simeq \tau_N + (V_N^0)_{\text{Mod. II}} \\ (V_Z^0)_{\text{Mod. I}} &\simeq \tau_Z + (V_Z^0)_{\text{Mod. II}} \end{aligned} \tag{6}$$

da die kinetischen Grenzenergien in beiden Fällen ungefähr gleich gross sind.

Das Modell II wird nur für die theoretische Bestimmung von α benutzt werden. Wenn nichts anderes bemerkt ist, ist im folgenden das Modell I angenommen.

*) In [6]) wurden die Radien der *Töpfe* streng proportional zu $A^{1/3}$ gewählt. Das ändert aber unser Resultat nicht.

Zur Ableitung von (3) benutzen wir nun als *erste Näherung* die folgende Vereinfachung: die Teilchenverteilung in den Potentialtöpfen nach dem Schalenmodell wird durch eine Fermiverteilung ersetzt. Insbesondere wird die *kinetische* Grenzenergie des obersten Nukleons im Topf mit der Grenzenergie eines Fermigases identifiziert. In dieser Näherung wird also angenommen, dass die Teilchen sich zwischen starren Wänden und in einem konstanten Potential bewegen (statt in dem tatsächlichen Potentialtopf).

Die kinetischen Grenzenergie eines Fermigases, das aus A Nukleonen (Gewichtsfaktor 4) besteht und in einer Kugel mit dem Radius R eingeschlossen ist, ist gegeben durch

$$\varepsilon_A = \frac{Mc^2}{2}\left(\frac{\hbar/Mc}{R/A^{1/3}}\right)^2\left(\frac{9\pi}{8}\right)^{2/3} \tag{7}$$

Falls die Protonen und Neutronen getrennt behandelt werden, sind die Grenzenergien

$$\varepsilon_N = \varepsilon_A\left(\frac{2N}{A}\right)^{2/3} \cdot \varepsilon_A\left\{1 - \frac{1}{3}\left[1 \cdot \frac{4Z^2}{A(A-1)}\right] + \frac{2}{9}\left(\frac{N-Z}{A}\right)^2 - 0\left(\frac{N-Z}{A}\right)^3\right\}$$

$$\varepsilon_Z = \varepsilon_A\left(\frac{2Z}{A}\right)^{2/3} \cdot \varepsilon_A\left\{1 - \frac{1}{3}\left[1 \cdot \frac{4N^2}{A(A-1)}\right] + \frac{2}{9}\left(\frac{N-Z}{A}\right)^2 - 0\left(\frac{N-Z}{A}\right)^3\right\} \tag{7'}$$

Hier ist $N - Z$ klein gegen A angenommen, was diese Entwicklung von $(2N/A)^{2/3}$ bzw. $(2Z/A)^{2/3}$ ermöglicht. Die beiden ersten Glieder in $(N-Z)$ lassen sich wie in (7′) umformen. Die 0-Terme von dritter und höherer Ordnung in $(N-Z)/A$ sind äusserst klein und werden vernachlässigt.

Die empirische Formel (3) kann man nun verstehen als eine Entwicklung der Bindungsenergie des Kerns, wobei als *erste Näherung* die Energie eines gewissen idealen kugelsymmetrischen Kernes, auftritt. Dieser ideale Kern soll aus $A/2$ Neutronen und $A/2$ Protonen bestehen und eine konstante (d. h. A-unabhängige) Ablösungsenergie α haben. Die Neutronen und Protonen befinden sich zwischen starren Wänden in dem *gleichen* konstanten Potential oder in zwei Potentialtöpfen mit derselben Ausdehnung wie sie durch die Wände gegeben ist. Wegen $N = Z$ nennen wir diesen idealen Kern den symmetrischen Kern. Was bei diesem idealen Kern vernachlässigt ist, ist natürlich erstens die Differenz $(N - Z)$ und die dadurch bedingte Verschiedenheit der Potentiale für Protonen und Neutronen. Zweitens sind eine Reihe von *Randeffekten* vernachlässigt: Die Potentialwände sind endlich hoch (keine starren Wände), die Wellenfunktionen der Nukleonen nehmen gegen den Rand hin ab und erstrecken sich etwas über die Potentialwände hinaus, was wiederum wegen der Selbst-Konsistenz schiefe Potentialwände mit sich bringt. Ferner bedingt die endliche Reichweite der Kernkräfte eine grössere Ausdehnung des Potentialtopfs als die der Materie. Endlich ist noch die Coulombenergie

in diesem idealen Kern nicht berücksichtigt. Die 3 letzten Glieder der empirischen Formel (3) berücksichtigen näherungsweise die Differenz $(N - Z)$, die Randeffekte und die Coulombenergie. Nach diesen wird entwickelt.

Betrachten wir zuerst den idealen symmetrischen Kern. Für R_{Materie} setzen wir nach HOFSTÄDTER[5])

$$R_{\text{Materie}} = R_{el} = R_0 A^{1/3} = R_{\text{Topf sym}} \tag{8}$$

$$R_0 = 1{,}08 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$$

Wegen der starren Wände ist die Ausdehnung des Potentialtopfs gleich der der Materie. Die Grenzenergien für die 2 Nukleonensorten sind beide gleich

$$\varepsilon = \frac{Mc^2}{2} \left(\frac{\hbar/Mc}{R_0}\right)^2 \left(\frac{9\pi}{8}\right)^{2/3} = 42 \text{ MeV}, \tag{9}$$

unabhängig von A wegen der strengen Proportionalität des Kernvolumens zur Teilchenzahl.

In Modell II ist die gesamte Bindungsenergie des symmetrischen Kerns:

$$B(A) = A \cdot V^0_{\text{Sym. M. II}} - E_K(A) \tag{10}$$

$$V^0_{\text{Sym. M. II}} = \varepsilon$$

wobei V^0_{Sym} das Potential des symmetrischen Kerns (mit unendlich hohen Wänden) und E_K die gesamte kinetische Energie der Teilchen ist. In unserem Fall gilt für ein Fermigas

$$E_K(A) = \frac{3}{5} \varepsilon \cdot A. \tag{11}$$

Die Differenz der kinetischen Energie von 2 Kernen A und $(A-1)$ (die verschiedene Radien besitzen) ist:

$$E_K(A) - E_K(A-1) = \frac{3}{5} \varepsilon$$

(obwohl das ionisierte Teilchen vom Topfboden um die gesamte Fermienergie ε entfernt ist). Die Differenz der Bindungsenergie von 2 Kernen A und $(A-1)$ gibt die Ablösungsenergie des symmetrischen Kernes. (Die unendlich hohen Wände sind natürlich nur als eine Idealisation für die Berechnung von ε usw. zu betrachten.) Nach (10) ist dann:

$$\alpha = B(A) - B(A-1) = \varepsilon - \frac{3}{5}\varepsilon = \frac{2}{5}\varepsilon \simeq 17 \text{ MeV} \tag{12}$$

Die Unabhängigkeit von α von A beruht auf der konstanten Dichte des symmetrischen Kerns. ε kann auch als Änderung der kinetischen Energie aufgefasst werden, wenn A um 1 grösser wird unter Konstanthaltung des

Topfradius. $-2/5\ \varepsilon$ in (12) stellt dann die Änderung der kinetischen Energie unter Konstanthaltung der Teilchenzahl dar, wenn der Radius von $R_{\text{Topf sym.}}(A)$ zu $R_{\text{Topf sym.}}(A+1)$ variiert. Die Ablösungsenergie α des symmetrischen Kerns ist also allein durch die Änderung des Radius der Materieverteilung während der Ionisation bestimmt. Somit haben wir den Wert von α rein theoretisch bestimmt. Wir werden sehen, dass (12) sehr gut mit dem empirischen Wert übereinstimmt.

Im Sinne von Modell I gilt für das Potential des symmetrischen Kerns nach (6) ($\tau_N = \tau_Z = \alpha$):

$$V^0_{\text{Sym. M. I}} = \alpha + \varepsilon \cong 59\ \text{MeV}. \tag{13}$$

unabhängig von A. Für alles weitere wird Modell II nicht mehr benutzt werden. Die Konstanz von V^0_{sym} ist mit dem angenommenen Radiusgesetz (8) (konstante Dichte der Kernmaterie) konsistent.

Die Bindungsenergie des symmetrischen Kerns, im Sinne von Modell I, erhält man durch Summation der sukzessiv vorkommenden Ablösungsenergien $\alpha = \text{konst}$: $B_{\text{sym}} = \alpha \cdot A$. Mit der Annahme $V^0_{\text{sym M. II}} = \varepsilon$ sind alle Grössen des Potentials des symmetrischen Kerns direkt aus dem Radiusgesetz für R_{Materie} bestimmt.

Betrachten wir jetzt die verschiedenen Korrekturen zur Bindungsenergie. Diese stellen die Abweichungen der kinetischen Grenzenergie und Tiefe des wahren Potentials gemäss Schalenmodell von den entsprechenden Grössen des symmetrischen Kernes dar. Das 2. Glied in (3) beschreibt den Unterschied der mittleren Kernkräfte (Topftiefen V^0) in erster Näherung für Protonen und Neutronen, denn die Topftiefen sind verschieden, wenn die Anzahl der beiden Nukleonensorten verschieden sind. Dies steht nicht im Widerspruch mit der experimentellen Tatsache der Ladungsunabhängigkeit der wirklichen Kernkräfte (z. B. der Ähnlichkeit der Niveauschemata der Spiegelkerne), sondern ist eine Folge des Ausschliessungsprinzips. Durch die Austauschkräfte, z. B. zwischen geladenen und ungeladenen Nukleonen, mit Ladungswechsel werden, falls $N > Z$, die Protonen bevorzugt, da die überschüssigen Neutronen, wegen des Ausschliessungsprinzips, nicht an der Austauschwechselwirkung teilnehmen. Folglich gilt für die mittleren Kernkräfte des Schalenmodells $V^0_Z > V^0_N$. Der Einfluss dieser Unsymmetrie auf die gesamte Bindungsenergie ist von der Form $\sim (N-Z)^2/A$ (erstes Glied der Entwicklung), denn die nötige Energie um die Töpfe des symmetrischen Kerns wieder herzustellen, ist

$$\Delta B \sim (N-Z)(V^0_N - V^0_Z) \sim (N-Z)\,(\varepsilon_N - \varepsilon_Z) \sim \frac{4}{3}\,\frac{(N-Z)^2}{A} \tag{14}$$

wenn man in (7′) nur die erste Näherung in $(N-Z)/A$ betrachtet und

$\tau_N = \tau_Z$ setzt. $\beta\,(N-Z)/A$ ist also ein Mass für die Unsymmetrie der mittleren Austauscheffekte.

Das 3. Glied in (3), die sogenannte „Oberflächenenergie" stellt im Schalenmodell die folgenden Randeffekte dar: Die Potentialwände des Schalenmodells sind endlich hoch (keine starren Wände). Dadurch wird die kinetische Grenzenergie verglichen mit der Fermieenergie des symmetrischen Kerns kleiner. Dies hat eine etwas grössere Bindung der Nukleonen zur Folge. Ferner nimmt, wegen dieser Randbedingungen, die Wellenfunktion der Nukleonen gegen den Rand hin allmählich ab (und erstreckt sich etwas über die Potentialwände hinaus), was wegen der Selbst-Konsistenz schiefe Potentialwände mit sich bringt. Dadurch wird die mittlere potentielle Energie der Nukleonen (gemittelt über den ganzen Kern) kleiner als die Topftiefe V^0. Durch diesen Effekt wird die Bindung der Nukleonen etwas vermindert. Eine Abschätzung dieser Effekte ist schon von v. Weizsäcker[7]) gegeben worden. Für ein trapezförmiges Potential (siehe Fig. 4 rechts) gibt das statistische Modell die $A^{2/3}$ Abhängigkeit (siehe Bethe und Bacher[8])). Wir akzeptieren hier diese Näherung. In unserem Modell stellt also das entsprechende Glied $2/3\ \gamma\ A^{-1/3}$ in der Ablösungsenergie (4) diese Randeffekte dar, genauer, es ist die Differenz der kinetischen Grenzenergien im Potential mit schiefen Wänden (mittlerer Radius $R_{\text{Topf sym.}}$) und im Potential des idealen symmetrischen Kerns. Der Zahlwert von γ wird bestimmt werden durch Vergleich mit den experimentellen Daten. (Siehe unten.).

Ein weiterer Randeffekt kommt von der endlichen Reichweite der Kernkräfte. Der mittlere Radius des wahren Potentials muss deshalb grösser sein als $R_{\text{Topf sym.}}$ (Radius des idealen Kerns), was eine weitere Korrektion zur kinetischen Grenzenergie bedingt. Zur Abschätzung benutzen wir weiterhin die Approximation der starren Wände, aber mit einem abgeänderten Radius $R_{\text{Topf}} > R_{\text{Topf sym}}$. Wir bestimmen $\bar{R}_{\text{Topf}}$ dadurch, dass die Fermienergie nach diesem Modell zusammen mit dem obigen Glied $2/3\ \gamma\ A^{-1/3}$ über das ganze periodische System hin mit der kinetischen Grenzenergie des wahren Potentials (Fig. 4), berechnet nach dem Schalenmodell, so gut wie möglich übereinstimmen. Hierbei kann nur die Grösse ε_A(Formel (7)) angepasst werden, da nur der eine Parameter R_{Topf} zur Verfügung steht. Ferner werden nur die idealen mittleren Kerne $\bar{N}(Z)$ (Fig. 1) benutzt. Das Resultat dieser Anpassung ist:

$$R_{\text{Topf}} = (1{,}08\,A^{1/3} + c)\cdot 10^{-13}\ \text{cm} \tag{15}$$

wobei c noch sehr schwach von A abhängt*). $\bar{R}_{\text{Topf}}$ muss mit dem mitt-

*) Für c könnte man einen konstanten Mittelwert wählen, (wie in (5)). Die A-Abhängigkeit erleichtert aber die Bestimmung von α, β, γ. Sie stellt eine Korrektur zweiter Ordnung zur kinetischen Grenzenergie dar (siehe unten).

leren Radius des wahren Potentials übereinstimmen, was in der Tat der Fall ist*).

Der letzte Randeffekt ist auch von der Form $\sim A^{-1/3}$. Die Differenz der Fermienergie ε des idealen Kerns mit dem Radius R_{Materie} ($\varepsilon \sim \varepsilon_A \sim (7)$) und die ε_A des idealen symmetrischen Kerns mit dem Radius R_{Topf} ist in der Tat

$$\Delta\varepsilon \sim \varepsilon_{(A \sim)} - \varepsilon_A \cong \varepsilon \frac{2c}{R_0 A^{1/3}} \sim A^{-1/3}$$

Das 4. Glied in (3) ist die gesamte Coulombenergie des Kerns. Das entsprechende letzte Glied von τ_Z (4) ist die gesamte Coulombenergie eines Protons im Kern. Dass die gesamte und nicht die mittlere Coulombenergie (3/5) Ze^2/R_{el} auftritt, stimmt überein mit unserer Definition der Kernpotentiale (im Modell I), die die wirklichen Kräfte darstellen.

Bis jetzt haben wir die Form der verschiedenen Glieder der Bindungsenergieformel (3) durch die typischen Grössen des Schalenmodells interpretiert und ausserdem den Wert von α direkt abgeleitet. Die Hauptannahme dabei war, dass die Einteilchenniveaus der Potentialtöpfe im Sinne von Modell II für den Kerngrundzustand (kompakte Besetzung), genau bis zur Nullinie der Energie besetzt sind. Eine direkte Ableitung der Konstante γ wäre an sich auch möglich, denn γ stützt sich auf die Topfgrössen des idealen Kernes, die wir direkt kennen. Aber eine Abschätzung der Randeffekte auf diesem Weg ist sehr umständlich. Dagegen stellt das 2. Glied in (3) einen Austauscheffekt dar, der nicht im Rahmen des Schalenmodells theoretisch abgeleitet werden kann. Der Wert von β kann deshalb nur aus den empirischen Ablösungsenergien entnommen werden.

Neben der Bestimmung der Konstanten β, γ ist es unser Ziel, auch noch einen Ausdruck für die Grösse des wahren Potentials der Kerne zu finden. Wir versuchen, die Tiefen des wahren Potentials V_N^0, V_Z^0 so zu bestimmen, dass daraus eine Ablösungsenergie der Form (4) entsteht, wenn wir die kinetische Grenzenergie des wahren Potentials davon abziehen. Wir setzen:

$$\begin{aligned} V_N^0 &= [\alpha + \varepsilon_A] - T_{1N} + T_2 \\ V_Z^0 &= [\alpha + \varepsilon_A] - T_{1Z} + T_2 \end{aligned} \tag{16}$$

wobei

$$\begin{aligned} T_{1N} &= \left(\beta - \frac{\varepsilon_A}{3}\right)\left[1 - \frac{4Z^2}{A(A-1)}\right] > 0 \\ T_{1Z} &= \left(\beta - \frac{\varepsilon_A}{3}\right)\left[1 - \frac{4N^2}{A(A-1)}\right] < 0 \end{aligned} \tag{16'}$$

$$T_2 = \frac{\delta}{3}\frac{Z(Z-1)}{A^{4/3}} + \frac{2}{9}\varepsilon_A \left(\frac{N-Z}{A}\right)^2$$

*) Der „mittlere Radius des wahren Potentials" (siehe [6]) ist definiert als der Radius eines rechteckigen Vergleichspotentials mit gleichem Fassungsvermögen und gleicher Grenzenergie wie das wahre Potential.

Die Ablösungsenergie τ - potentielle Energie–kinetische Grenzenergie:

$$\tau_N = V_N^0 - \left(\varepsilon_N + \frac{2}{3}\frac{\gamma}{A^{1/3}}\right)$$
$$\tau_Z = V_Z^0 - V_c - \left(\varepsilon_Z + \frac{2}{3}\frac{\gamma}{A^{1/3}}\right) \qquad (17)$$

$$V_c = 2\,\delta\,\frac{Z-1}{(A-1)^{1/3}} \qquad (18)$$

stimmt dann mit (4) überein. V_c ist die gesamte Coulombenergie eines Protons.

Die gesamte Bindungsenergie B des Kerns im Sinne von Modell I erhalten wir aus (17) durch sukzessive Summation der τ, was (3) liefert, denn die Ablösungsenergien (17) sind die partiellen Ableitungen von B nach N und Z.

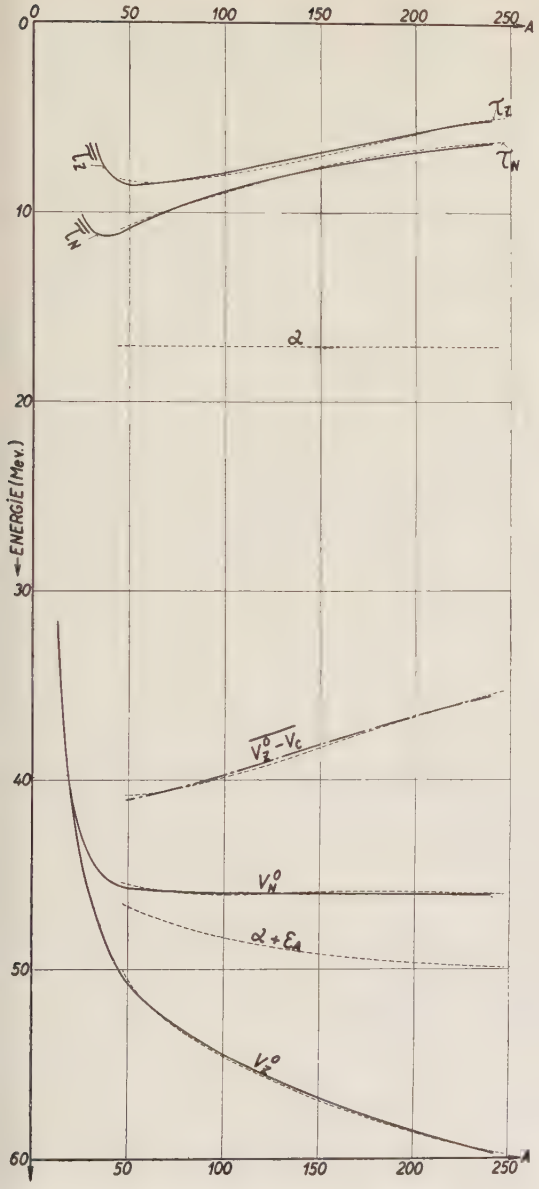
Wir bestimmen jetzt die Konstanten α, β, γ in (3). Dies tun wir so, dass die *halbempirischen Ausdrücke* (16) für V_N^0, V_Z^0 und (17) für τ_N, τ_Z die *aus dem Schalenmodell berechneten Potentialtiefen**) und die *empirischen mittleren Ablösungsenergien* $\bar{\tau}_N$, $\bar{\tau}_Z$ für alle A so gut wie möglich wiedergeben. (α ist hier auch aus den empirischen Ablösungsenergien neu bestimmt.) Die empirischen mittleren Ablösungsenergien $\bar{\tau}$ sind Mittelwerte (über das ganze periodische System) der Kurvenstücke K_j^P (Fig. 1) die die Grundzustände der Kerne enthalten. $\bar{\tau}_N$ ist der Mittelwert der Zackenlinie in (I) Fig. 5, oberer Teil. Die Konstante δ folgt schon aus dem empirischen Wert von R_0 (8) allein. Fig. 4 skizziert die Methode und Fig. 5 gibt die Resultate der Anpassung**). Dabei werden für jeden A-Wert die mittleren Neutronen und Protonenzahlen benutzt (durch die Verteilungslinie $\bar{N}(Z)$ Fig. 1 der stabilen Kerne gegeben). Fig. 5 liefert dann die Zahlenwerte für die Konstanten:

$$\alpha = 17{,}1\ \text{MeV} \qquad \beta = 26{,}9\ \text{MeV} \qquad \gamma = 21{,}7\ \text{MeV} \qquad \delta = 0{,}80\ \text{MeV} \qquad (3')$$

Die ausgezeichnete Übereinstimmung des empirischen Wertes von α (Formel (3')) mit dem theoretischen α (Formel (12)) liefert die Berechtigung unserer Annahme über den Radius des symmetrischen Kernes. Die Grösse c (15) wächst sehr langsam mit A($A = 50 : c = 0{,}72$, $A = 240$: c = 0,81) was durch die langsame Abnahme der empirischen mittleren Ablösungsenergien $\bar{\tau}$ für wachsende A-Werte bedingt wird. Wegen der endlichen Neigung der Topfwände folgt daraus eine mit A etwas stärkere

*) Die Berechnung der Energieniveaus mit schiefwandigen Potentialtöpfen und auf Grund der letzten Hofstädterschen Messungen wurde von Herrn A. Schröder durchgeführt.

**) Die Anpassung darf nicht für $A < 50$ fortgesetzt werden, weil dann $\bar{\tau}_N(A)$, $\bar{\tau}_z(A)$, nicht mehr die mittleren Ablösungsenergien der mittleren Kerne $\bar{N}(Z)$ darstellt.



Bezieht sich auf die durch $\overline{N}(Z)$ (Fig. 1) gegebenen idealen mittleren Kerne. Gleiche Bezeichnung wie in Fig. 4.

Fette Kurven: $\bar{\tau}_N$, $\bar{\tau}_Z$ = mittlere empirische Ablösungsenergie eines Neutrons bzw. Protons als Funktion von A. (Mittelwert über das ganze periodische System des Bogenstückes der Linien $\overline{K}_{jP}$ das die Kerngrundzustände enthält.) V_N^0, V_Z^0: die aus Topfradius, Neigung der Topfwände und mittlerer empirischer Ablösungsenergie $\bar{\tau}_N$ bzw. $\bar{\tau}_Z$ im Rahmen des Schalenmodells gerechneten Potentialtiefen. Die V_N^0 der leichten Kerne: C^{13}, O^{17} (in I, Fig. 9, an gegeben) sind hier verwendet, um die Topftiefen V^0 im Gebiet $A < 40$ zu interpolieren.

Gestrichelte Kurven: entsprechende Linien gerechnet nach (17) (τ) und (16) (V^0).

Fig. 5.

Die Bestimmung der Konstanten α, β, γ der Bindungsenergieformel (3) *durch Anpassung der berechneten Topfpotentiale über das ganze periodische System.*

*

Zunahme des Radius R_{Topf} (15) des Vergleichspotentials (das in (7) eingeht) als es das $A^{1/3}$-Gesetz gibt. (Bringt eine Korrektur 2. Ordnung der kinetischen Grenzenergie mit sich.) Wenn wir für c einen Mittelwert für alle A gewählt hätten, würden die gerechneten Kurven V_N^0, V_Z^0 (Fig. 5 gestrichelte Linien) etwas schief zu den empirischen Daten V^0 (Fig. 5 fette Linien) liegen, was die Bestimmung der Konstanten β erschweren würde.

Der Verlauf der $\bar{\tau}$ und V^0 gemäss Schalenmodell, ist recht gut wiedergegeben, wenn man bedenkt, dass die Ausdrücke (16), (17) nur eine erste Näherung darstellen. Der Faktor $(\beta - \varepsilon_A/3)$ von T_{1N}, $T_{1Z}(16')$ ist wesentlich für die Anpassung an die Topfböden für Protonen und Neutronen. In I wurde erwähnt, dass $V_N^0 \cong 46$ MeV praktisch für alle $A > 50$. Fig. 5 zeigt, dass diese Konstanz ein Zufall ist und von einer näherungsweisen Kompensation der Zunahme von $(\alpha + \varepsilon_A)$ und T_2 und von T_{1N} herrührt.

Die Konstanten α, β, γ der Bindungsenergieformel (3) beziehen sich bis jetzt nur auf die Ablösungsenergie der mittleren stabilen Kerne. Jedoch erwarten wir, dass die berechneten Ablösungsenergien τ mit den obigen Konstanten auch die wirkliche Ablösungsenergie *aller* möglichen Kerne approximieren, denn das verwendete Kernmodell sollte auch ausserhalb des Energietals gültig sein. In der Tat, tragen wir die τ_N bzw. τ_Z (Formel 4) als Funktion von N bzw. Z auf, so erhalten wir für A-Werte > 30 Kurven, die in sehr befriedigender Weise mit den Mittelwerten $\bar{K}_Z$ bzw. K_N der Kurven K_{Zj^P} bzw. K_{Nj^P} übereinstimmen ($\bar{K}_N$ entspricht τ_Z) (Mittelwerte über j^P). Fig. 2 zeigt zwei solche Mittelwertkurven für die Isotopenfolge $Z = 26$ und 40 (gestrichelte Kurven, mit W bezeichnet). Dies liefert eine strenge Prüfung des Wertes von β, denn das entsprechende Glied in (4) gibt im wesentlichen allein die Neigung der K_Z. Der angegebene Wert von $\beta(3')$ liefert also tatsächlich die richtige Form der Kurven K_Z.

Das allgemeine Verhalten der mittleren Ablösungsenergie eines Nukleons lässt sich also gut im Rahmen des Schalenmodells interpretieren. Damit geben auch die Formeln (16) eine Abschätzung der Grösse V_N^0 bzw. V_Z^0 des wahren Potentials für *alle* möglichen Kerne.

§ 4. Der Radius der Kerne

Zum Schluss wollen wir noch kurz die Kernradien im Zusammenhang mit dem Schalenmodell betrachten.

Bis jetzt haben wir immer für den Radius der Materie eine reine $A^{1/3}$-Abhängigkeit, oder für den Potentialtopf $R_K = R_0\, A^{1/3} + \text{const.}$ angenommen. Es scheint jedoch, dass eine solche Abhängigkeit nur für den

symmetrischen Kern gültig sein kann, denn nur in diesem idealen Fall sind die Kernkräfte von A unabhängig, was wegen der Selbst-Konsistenz eine streng konstante Materiedichte bedeutet. Die letzten Resultate HOFSTÄDTERS[5]) scheinen auch in diesem Sinne zu sprechen: R könnte etwas schneller als $A^{1/3}$ wachsen: Für $40 \leq A \leq 122$ streut R_{el} um $1{,}07\ A^{1,3}$. Aber für grössere Kerne Au^{197}, Bi^{209} scheint R_0 systematisch grösser als 1,07 zu sein. Das ist der Grund warum $R_0 = 1{,}08$ gewählt wurde.

Das Schalenmodell gestattet heuristisch dieses Resultat abzuleiten, wenn wir für den idealen *symmetrischen* Kern die Annahme

$$R_{\text{Topf sym.}} = \text{const. } A^{1/3}$$

machen. Sind die beiden Potentialtöpfe $V_N(r)$, $V_Z(r)$ verschieden tief, so fallen sicher die beiden Topfwände nicht zusammen (Fig. 4, rechts), so dass die Ausdehnung der entsprechenden Nukleonenwolken verschieden sind. R_{Materie} wird, ähnlich wie im Falle der Bindungsenergie, durch eine Entwicklung gegeben

$$\begin{aligned} R_{\text{Materie}} &\simeq R_0 A^{1/3}\left[1 + \text{const. } (V_N^0 - V_Z^0) \cdot \frac{N-Z}{A} + \cdots\right] \\ &\sim R_0 A^{1/3}\left[1 + \text{const. } \left(\frac{N-Z}{A}\right)^2 + \cdots\right] \end{aligned} \tag{19}$$

Im Gegensatz zu (14) kommt in der zweiten Näherung $(N-Z)/A$ vor, während bei der gesamten Bindungsenergie $(N-Z)$ direkt auftritt. Diese erste Korrektur ist schon recht klein. (Natürlich spielt diese Korrektur von R_{Materie} bei der Bindungsenergie keine Rolle mehr.) Ein identischer Ausdruck (mit const $= 0{,}66$) wurde schon von BETHE und BACHER[9]) abgeleitet aus der Bestimmung des Extremums der Bindungsenergie der Kerne im statistischen Modell.

Dem Forschungsrat des Schweizerischen Nationalfonds möchte ich an dieser Stelle meinen besten Dank für die Gewährung eines Forschungsstipendiums aussprechen. Den Herren Professoren Dr. W. HEITLER und K. BLEULER möchte ich für wertvolle Diskussionen recht herzlich danken. Herrn A. SCHRÖDER bin ich für seine neue Bestimmung der Topfdaten zu grossem Dank verpflichtet.

Literatur

[1]) Bleuler, K., and Terraux, Ch., Helv. Phys. Acta *30*, 183 (1957). Hier mit I bezeichnet.

[2]) Wapstra, A. H., Physica *21*, 367, 385 (1955).

[3]) Huizenga, J. R., Physica *21*, 410 (1955).

[4]) Katherine Way *et al.*, Nuclear Data.

[5]) Hahn, B., Ravenhall, D. G., and Hofstädter, R., Phys. Rev. *101*, 1131 (1956); Hofstädter, R., Rev. Mod. Phys. *28*, 214 (1956).

[6]) Bleuler, K., und Terreaux, Ch., Helv. Phys. Acta *28*, 245 (1955).

[7]) v. Weizsäcker, C. F., Z. Phys. *96*, 431 (1935).

[8]) Bethe, H. A., and Bacher, R. F., Rev. Mod. Phys. *8*, 82 (1936). Speziell Formel (180), p. 164.

[9]) Bethe, H. A., and Bacher, R. F., ibid. Speziell Formel (167), p. 160.

The Production and Absorption of Neutrinos in Beta-Decay Theory

by **Charles P. Enz**

(Swiss Federal Institute of Technology, Zürich)

(15. XI. 1957)

Summary. The implications of non-conservation of parity and of lepton charge for the processes (1) $(A, Z-1) \rightarrow (A, Z) + e^- + \nu$ and (2) $p + \nu \rightarrow n + e^+$ are studied. The neutrinos from (1) are described by a density matrix which, in a form applicable to pile neutrinos, is used, in particular, to calculate the cross section $\bar{\sigma}$ for reaction (2). From the general dependence of $\bar{\sigma}$ on the coupling constants the result of LEE and YANG, that $\bar{\sigma}$ is twice as big in the two-component theory as in the conventional theory, is recognized as a special case. In addition experiments are discussed to determine the spectrum and polarization of pile neutrinos. Attention is also given to Pauli's invariance principle.

1. Introduction

Now that enormous neutrino fluxes are available from uranium piles, the neutrino has become a particle of the experimentalists as is seen from the work of COWAN and REINES[1]) and of DAVIS[2]). On the other hand, since the breakdown of parity was discovered, the neutrino has also become a particle of great interest to the theoreticians as is examplified by the proposals of a two-component theory[3]). We believe that in the present situation a formal description of neutrinos emerging from a pile is neither entirely trivial nor is it without interest. In fact, if one adopts the point of view of a phenomenological beta-decay interaction with non-conservation of parity and of lepton charge as proposed by PAULI[4]), one finds that free neutrinos have to be described by a *density matrix*. The reason for this is, that unless lepton charge is conserved, there will be interference between the two states of different neutrino "charge" $l = 1, 2$ and given longitudinal spin $s = +, -$. This is a consequence of Pauli's canonical transformations of the neutrino field[4]) which mix "particle" and "antiparticle" states, but do not mix states of different longitudinal spin for a given neutrino momentum. Thus, the density matrix is diagonal in s as is shown explicitely in section 4.

On the other hand, the interest of such a description of free neutrinos lies in the fact that the discussion in terms of the coupling constants of the cross section for any neutrino experiment is only possible if due ac-

count is taken of the production process. The example which has been most discussed in the last months is the cross section $\bar{\sigma}$ for the Cowan and Reines experiment. The reason is that from this experiment, if accurate enough, conclusions for or against the two-component theory can be drawn. Indeed, in their paper quoted in ref. 3 LEE and YANG indicated that in the two-component theory $\bar{\sigma}$ is twice as big as $\bar{\sigma}^c$, the value of the conventional theory. This statement was based on a purely qualitative detailed balance argument. In section 2 we shall reproduce this argument (as we understand it) in a more quantitative form. The statement will reappear in section 5 as particular value of the expression $\bar{\sigma}/\bar{\sigma}^c$ which exhibits a continuous variation with the coupling constants. It will be seen from the results of section 5 that for the calculation of $\bar{\sigma}$ the neutrino spectrum and its polarization in function of energy is needed (and still a third function if lepton charge is not conserved). The possibility of a measurement of these functions is discussed in section 6.

It should be mentioned also that the density matrix concept is not the only means of arriving at $\bar{\sigma}$. Indeed, production and re-absorption could also be considered as a double process analogous to those studied in an earlier note[5]). The connection between the two methods, which are entirely equivalent, will be briefly discussed in section 3. Of course the density matrix is the more physical concept and has the further advantage that it can be used to describe any experiment with free neutrinos.

We should like to add a remark about Pauli's *invariance principle* since the formulae of the present paper are typical examples of its applicability. A general formulation of this principle was given in ref. 4. In a special case it was also applied by PURSEY[6]) and reformulated by KAHANA and PURSEY[7]). An important contribution is due to LÜDERS[8]). It is contained in the following statement: If O is any invariant operator and c^*_{ls}, c_{ls} are the creation and destruction operators for a neutrino in a state of "charge" $l = 1,2$ and longitudinal spin $s = +, -$, then the projection operator $\sum_l c^*_{ls} O c_{ls}$ into the (two dimensional) subspace of given spin component s is invariant[9]).

Based on Lüders' result we propose the following formulation of the invariance principle, which is well adapted to the examples occurring in the following sections:

A sum of products of S-matrix elements is invariant with respect to the Pauli group if the state vectors with 0, 1, 2, ... *neutrinos,*

$$|\, U\rangle,\ c^*_{ls}\,|\, U\rangle,\ c^*_{ls}\, c^*_{l's'}\,|\, U\rangle,\ \ldots,$$

form projection operators into the subspaces of given neutrino spin component

$$|\, U\rangle\langle V\,|,\ \sum_l c^*_{ls}\,|\, U\rangle\langle V\,|\, c_{ls},\ \sum_{l,l'} c^*_{ls}\, c^*_{l's'}\,|\, U\rangle\langle V\,|\, c_{l's'}\, c_{ls},\ \ldots$$

This statement becomes evident if one considers as elements of the Pauli group the *combined* transformation of the neutrino field and of the coupling constants, such that the interaction Hamiltonian stays invariant. Since, for zero neutrino mass, this group also leaves the free neutrino Hamiltonian and the commutation relations invariant, the invariance of state vectors is guaranteed, except for transformations within the two dimensional subspace of given neutrino spin component.

2. Preliminary Discussion

A "theory" shall be defined by the coupling parameters in Pauli's interaction Hamiltonian[4])

$$H_{\text{int}}(x) = \sum_i (\bar{\psi}_n O_i \psi_p)\{(\bar{\psi} Q_{1i} \psi_e) + (\bar{\psi}_\nu^c Q_{2i} \psi_e)\} + \text{herm. conj.} \quad (2.1)$$

Here we have introduced the abbreviations

$$\left.\begin{aligned} Q_{1i} &= (F_{1i}\tfrac{1}{2}(1+\gamma_5) + G_{1i}\tfrac{1}{2}(1-\gamma_5))\, O_i \\ Q_{2i} &= (-F_{2i}\tfrac{1}{2}(1+\gamma_5) + G_{2i}\tfrac{1}{2}(1-\gamma_5))\, O_i \end{aligned}\right\} \quad (2.2)$$

and

$$O_i = 1, \gamma_\mu, i\gamma_\mu\gamma_\nu\ (\mu < \nu), i\gamma_5\gamma_\mu, \gamma_5 \quad (2.3)$$

so that $O_i^* = O_i$, $O_i^2 = 1$. As in ref. 4 and 5, ψ contains the emission of particles and the absorption of antiparticles (see footnote 12). The charge conjugate ψ^c is defined as in ref. 4. We also use the assumption $m_\nu = 0$.

The conventional (parity and lepton charge conserving) theory is characterized by $F_{1i} = G_{1i}$, $F_{2i} = G_{2i} = 0$, the (lepton charge conserving) two-component theory by $G_{1i} = F_{2i} = G_{2i} = 0$.

The S-matrix element for neutrino absorption from a charge and spin state (l, s) in the reaction of Cowan and Reines, $p + \nu \to n + e^+$, is of the form

$$\langle n e^+ | S | p \nu \rangle = -i(2\pi)^{-2} \delta^4(p_n + p_e - p_p - p_\nu) \cdot T_{ls}^{\text{abs}}. \quad (2.4)$$

For the absorption cross section $\bar{\sigma}$ an average over the initial states (l, s) has to be formed which in the case of lepton conservation can be written ($l = 1$ for antineutrino)

$$\sum_{ls} a_{ls} | T_{ls}^{\text{abs}} |^2;\ \sum_{ls} a_{ls} = 1,\ a_{2s} = 0$$

(A general expression for $\bar{\sigma}$ will be derived in section 3.) In the conventional theory the antineutrinos are not polarized,

$$a_{1+} = a_{1-} = \tfrac{1}{2} \quad (2.5)$$

whereas in the 2-component theory they are completely polarized backward (or forward)

$$a_{1+} = 0, \quad a_{1-} = 1 \quad (\text{or } a_{1+} = 1, \; a_{1-} = 0). \tag{2.6}$$

Now for all states (l, s) for which a_{ls} vanishes T^{abs}_{ls} vanishes too. This is a sort of detailed balance argument since the a_{ls} are determined by matrix elements of the type describing neutrino emission in the decay of the neutron

$$\langle p e^- \nu \mid S \mid n \rangle = -i\,(2\pi)^{-2}\,\delta^4(p_p + p_e + p_\nu - p_n)\cdot T^{\text{em}}_{ls}.$$

But if

$$T^{\text{abs}}_{ls} = 0, \text{ all } (l, s) \text{ such that } a_{ls} = 0 \tag{2.7}$$

we can write, using (2.5) and (2.6)

$$\sum_{ls} a_{ls} \mid T^{\text{abs}}_{ls} \mid^2 = \tfrac{1}{z} \sum_{ls} \mid T^{\text{abs}}_{ls} \mid^2 \tag{2.8}$$

with $z = 2$ for the conventional and $z = 1$ for the 2-component theory. The expression $\sum_{ls} \mid T^{\text{abs}}_{ls} \mid^2$ (summed over spin and angle variables of n, p, e^+) is an example of Pauli's invariance principle and, as we shall see, it depends on the same invariant expressions of the coupling constants as the lifetimes of allowed transitions do. Now since lifetimes are empirical quantities these invariants have to be constants with respect to a change of the theory (coupling parameters). Likewise the neutrino spectrum is an empirical quantity[11]) and thus is a constant in this sense. Then the only quantity in $\bar{\sigma}$ which is different for the two theories in consideration is the number z in (2.8) and it follows

$$\bar{\sigma}^{\text{"2"}}/\bar{\sigma}^{c} = 2 \tag{2.9}$$

("2" for 2-component, c for conventional) which is the result of LEE and YANG.

To be more specific we shall write down explicit expressions for $\langle \mid T^{\text{abs}}_{ls} \mid^2 \rangle$ and $\langle \mid T^{\text{em}}_{ls} \mid^2 \rangle$, where $\langle\rangle$ means an average over the spins of n, p, $e^\pm$ and over the direction of $e^\pm$. In first order of perturbation theory it follows[12])

$$T^{\text{abs}}_{l\pm} = \sum_i (\bar{u}_n O_i u_p)^* (\bar{v}_\pm Q_{li}\, v_e)^* \tag{2.10}$$

$$T^{\text{em}}_{l\pm} = \sum_i (\bar{u}_n O_i u_p)(\bar{v}_\pm Q_{li}\, u_e) \tag{2.11}$$

As a consequence of $m_\nu = 0$ the neutrino spinors have the property

$$\left.\begin{aligned} \bar{v}_+ Q_{li} &= G_{li}\, \bar{v}_+ O_i \\ \bar{v}_- Q_{li} &= \pm F_{li}\, \bar{v}_- O_i; \quad l = \{\tfrac{1}{2}\end{aligned}\right\} \tag{2.12}$$

For non-relativistic nucleons it then follows

$$\left.\begin{aligned} 8\langle|T^{\mathrm{em}}_{\mathrm{abs}\,l+}|^2\rangle &= (|G_{ls}|^2+|G_{lv}|^2)+3\,(|G_{lT}|^2+|G_{lA}|^2)\pm \\ &\pm\frac{m}{W}\,[(G^*_{lS}G_{lV}+G^*_{lV}G_{lS})+3\,(G^*_{lT}G_{lA}+G^*_{lA}G_{lT})] \end{aligned}\right\} \tag{2.13}$$

$$\left.\begin{aligned} 8\langle|T^{\mathrm{em}}_{\mathrm{abs}\,l-}|^2\rangle &= (|F_{lS}|^2+|F_{lV}|^2)+3\,(|F_{lT}|^2+|F_{lA}|^2)\pm \\ &\pm\frac{m}{W}\,[(F^*_{lS}F_{lV}+F^*_{lV}F_{lS})+3\,(F^*_{lT}F_{lA}+F^*_{lA}F_{lT})] \end{aligned}\right\} \tag{2.13'}$$

where m and W are the mass and energy of the $e^{\pm}$. It can immediately be seen that a detailed balancing between the reactions $n\to p+e^-+\nu$ and $p+\nu\to n+e^+$ (which are not inverse) of the form

$$\langle|T^{\mathrm{em}}_{ls}|^2\rangle=\langle|T|^{\mathrm{abs}}_{ls}|^2\rangle \qquad (l,s)\ \text{fixed}$$

is only true for vanishing Fierz-terms but that (2.7) is a true special case of such a relation.

After summation over the states (l, s) one gets

$$\left.\begin{aligned} 4\sum_{ls}\langle|T^{\mathrm{em}}_{\mathrm{abs}\,ls}|^2\rangle &= (K_{SS}+K_{VV})+3\,(K_{TT}+K_{AA}\pm \\ &\pm\frac{m}{W}\,[(K_{SV}+K_{VS})+3\,(K_{TA}+K_{AT})] \end{aligned}\right\} \tag{2.14}$$

where K_{ij} is a Pursey-Pauli invariant, defined by

$$K_{ij}=\frac{1}{2}\,(A^+_{ij}+A^-_{ij})=K^*_{ij} \tag{2.15}$$

with

$$\left.\begin{aligned} A^-_{ij}&=F^*_{1i}F_{1j}+F^*_{2i}F_{2j}=A^{-*}_{ji} \\ A^+_{ij}&=G^*_{1i}G_{1j}+G^*_{2i}G_{2j}=A^{+*}_{ji}. \end{aligned}\right\} \tag{2.16}$$

The only other type of invariants occurring in this paper is

$$L_{ij}=\frac{1}{2}\,(A^+_{ij}-A^-_{ij})=L^*_{ii}. \tag{2.17}$$

These invariants L_{ij} always occur in connection with pseudoscalar quantities (see for instance the table in ref. 8). If for instance the difference between $s=+$ and $s=-$ in the expressions (2.13, 13') is taken one arrives at the right side of (2.14) with the K_{ij} replaced by the L_{ij}. This is a measure for the neutrino polarization (see (4.18)).

3. General Form of Density Matrix and Cross Section

Let us consider the nuclear beta-decay

$$N(A, Z-1) \rightarrow N(A, Z) + e^- + \nu. \tag{3.1}$$

The S-matrix element for this reaction is

$$\langle Fe^-\nu | S | I \rangle = -i\,(2\pi)^{-1/2}\,\delta(W_N - W - \omega)\cdot T^N_{ls,\vec{q}} \tag{3.2}$$

where

$$T^N_{l\pm,\vec{q}} = \sum_i \int d^3x \Phi_i(\vec{x})\, e^{-i\vec{q}\vec{x}} \left(\bar{v}_{\pm}(\vec{q})\, Q_{ti}\chi(\vec{x})\right) \tag{3.3}$$

and

$$\Phi_i(\vec{x}) = \int d\tau'\,(U_F^* O_i \varepsilon U_I). \tag{3.4}$$

Here U_I and U_F are the properly anti-symmetrized wave functions of the initial and final state nucleus, $\vec{x}$ being a neutron and a proton coordinate respectively. $\int d\tau'$ means summation over all nucleon coordinates except $\vec{x}$. The operator ε exchanges the neutron with coordinate $\vec{x}$ in U_I against a proton. $\chi_{p,k,m}(Z,\vec{x})$ is the Coulomb wave function of the electron in a state of positive energy $W = \sqrt{m^2 + \vec{p}^2}$ with radial functions f_k, g_k ($k = \pm 1, \pm 2, \ldots$). W_N is the spectrum limit, $\vec{q}$ and $\omega = |\vec{q}|$ the neutrino momentum and energy respectively.

To facilitate trace formation in the density matrix we temporarily introduce discrete energy-momentum variables by a finite normalization volume V for the neutrino field and a finite transition time T. The prescription is

$$\left.\begin{aligned} \delta^3(\vec{q} - \vec{q}') &\rightarrow V(2\pi)^{-3}\,\delta^3_{\vec{q},\vec{q}'} \\ \delta(\omega - \omega') &\rightarrow T(2\pi)^{-1}\,\delta_{\omega,\omega'} \end{aligned}\right\} \tag{3.5}$$

with Kronecker instead of Dirac δ's. Then we can write instead of (3.2)

$$S^N_{ls,\vec{q}} = -iTV^{-1/2}\,\delta_{W_N - W,\,\omega}\cdot T^N_{ls,\vec{q}} \tag{3.2'}$$

For the density matrix of a convergent neutrino beam in the direction $\vec{e} = \vec{q}/\omega = \vec{q}'/\omega'$ we need the expression

$$\sum_{\text{nucl}}\sum_{\text{km}} \int dp\; S^N_{ls,\vec{q}}\, S^{N*}_{l's',\vec{q}'} = \frac{T^2}{V}\,\delta_{\omega,\omega'} \int dp\, \frac{2\pi}{T}\,\delta(W_N - W - \omega)$$

$$\cdot \sum_{\text{nucl}}\sum_{\text{km}} T^N_{ls,\vec{q}}\, T^{N*}_{l's',\vec{q}} = \frac{T}{V}\,2\pi\,\delta_{\omega,\omega'}\, R^N_{ls,l's'}(\omega)$$

where

$$R^N_{ls,l's'}(\omega) = \left[\frac{W}{p}\sum_{\text{nucl}}\sum_{\text{km}} T^N_{ls\vec{q}}\; T^{N*}_{l's',\vec{q}}\right]_{W = W_N - \omega} \tag{3.6}$$

and $\sum_{\text{nucl}}$ means an averaging over initial and summation over final nuclear states. Then the density matrix is

$$P^N_{ls\vec{q},\, l's'\vec{q}'} = \delta_{\omega,\omega'} \cdot R^N_{ls,\, l's'} / \sum_{ls} \sum_{\vec{q}}{}' R^N_{ls,\, ls} \,. \tag{3.7}$$

This is normalized to give

$$Tr\ \mathbf{P}^N = \sum_{ls} \sum_{\vec{q}}{}' P^N_{ls\vec{q},\, ls\vec{q}} = 1. \tag{3.8}$$

Here $\sum_{\vec{q}}{}'$ means summation within a small solid angle in the direction $\vec{e}$ [13]).

To give a description of a neutrino beam from a pile we have to take into account all possible processes (3.1)[14]). Let us call λ_N the relative rate of formation in the pile of the initial state nucleus $N(A, Z-1)$. Then the correct averaging procedure is

$$P_{ls\vec{q},\, l's'\vec{q}'} = \delta_{\omega,\omega'} \cdot \langle R_{ls,\, l's'} \rangle / \sum_{ls} \sum_{\vec{q}}{}' \langle R_{ls,\, ls} \rangle \tag{3.7'}$$

where

$$\langle R_{ls,\, l's'}(\omega) \rangle = \sum_N \lambda_N \cdot \Theta(W_N - m - \omega) \cdot R^N_{ls,\, l's'}(\omega); \quad \sum_N \lambda_N = 1 \tag{3.9}$$

The step function Θ ensures that the condition $W = W_N - \omega \geq m$ in (3.6) is fulfilled.

This density matrix has to be used to get the cross section for the Cowan Reines experiment. First we write the matrix element (2.4) in the V, T-normalization (discrete energy-momentum)

$$S^{\text{abs}}_{ls,\, \vec{q}} = -i \frac{T}{V} \delta^4_{p_n + p_e + p_p,\, p_\nu} \cdot T^{\text{abs}}_{ls,\, \vec{q}}$$

where the energy-momentum vectors are (target proton at rest)

$$p_n = (\vec{p}_n, E_n = \sqrt{m_n^2 + \vec{p}_n^{\,2}},\ p_p = (0, m_p)$$

$$p_e = (\vec{p}', W' = \sqrt{m^2 + \vec{p}'^{\,2}},\ p_\nu = (\vec{q}, \omega = |\vec{q}|)$$

then

$$\bar{\sigma} = \frac{V}{T} \sum_{\vec{p}_n} \sum_{\vec{p}'} \frac{1}{2} \sum_{pne} \sum_{ls} \sum_{\vec{q}}{}' \sum_{l's'} \sum_{\vec{q}'}{}' S^{\text{abs}}_{ls\vec{q}}\, P_{ls\vec{q},\, l's'\vec{q}'}\, S^{\text{abs}*}_{l's'\vec{q}'}$$

where $\sum_{pne}$ means the spin sums of p, n and e.

Going back to continuous variables ($V \to \infty$, $T \to \infty$) replacing $\sum_{\vec{q}}{}'$ by $\int d\omega \cdot \omega^2$ and Kronecker by Dirac δ's, one easily finds

$$\bar{\sigma} = \int d\omega \cdot \omega^2 \sum_{ls} \sum_{l's'} \left\{ \omega^2 \langle R_{ls,\, l's'} \rangle / \sum_{ls} \int d\omega \cdot \omega^2 \langle R_{is,\, ls} \rangle \right\} \cdot$$

$$\cdot (2\pi)^{-2} \int d^3p'\, \delta(E_n - m_p + W' - \omega) \frac{1}{2} \sum_{pne} T^{\text{abs}*}_{l's'\vec{q}}\, T^{\text{abs}}_{ls\vec{q}} \,.$$

This formula takes a simple form if one introduces a reduced density matrix

$$\varrho_{ls,\,l's'}(\omega) = \omega^2 \langle R_{ls,\,l's'}(\omega)\rangle \,/\, \sum_{ls} \int_0^\infty d\omega \cdot \omega^2 \langle R_{ls,\,ls}\rangle \tag{3.10}$$

and a cross section matrix

$$\left.\begin{aligned} \sigma_{ls,\,l's'}(\omega) = (2\pi)^{-2} \int_{\omega_0}^\infty d^3 p' \,\delta\,(E_n - m_p + W' - \omega)\cdot \\ \cdot \frac{1}{2} \sum_{pns} T^{\mathrm{abs}*}_{ls\vec{q}}\, T^{\mathrm{abs}}_{l's'\vec{q}}. \end{aligned}\right\} \tag{3.11}$$

It follows that

$$\overline{\sigma} = \sum_{ls} \sum_{l's'} \int_{\omega_0}^\infty d\omega \cdot \omega^2\, \varrho_{ls,\,l's'}(\omega)\, \sigma_{l's',\,ls}(\omega) = \int_{\omega_0}^\infty d\omega \cdot \omega^2 \cdot Tr\,(\boldsymbol{\varrho}\cdot\boldsymbol{\sigma}). \tag{3.12}$$

Here

$$\omega_0 = m_n - m_p + m \cong 3{,}53 \cdot m \tag{3.13}$$

is the threshold energy for neutrino absorption.

It is clear that

$$\varrho(\omega) = Tr\,\boldsymbol{\varrho} = \omega^2\, Tr\langle \boldsymbol{R}\rangle \,/ \int_0^\infty d\omega \cdot \omega^2\, Tr\langle \boldsymbol{R}\rangle \tag{3.14}$$

is the neutrino spectrum which as a consequence of (3.10) has the property

$$\int_0^\infty d\omega \cdot \varrho(\omega) = 1. \tag{3.15}$$

It is also useful to introduce the matrix

$$\boldsymbol{\alpha}(\omega) = \boldsymbol{\varrho}/\varrho = \langle \boldsymbol{R}\rangle \,/\, Tr\langle \boldsymbol{R}\rangle \tag{3.16}$$

for which

$$Tr\,\boldsymbol{\alpha} = 1. \tag{3.17}$$

With this matrix the cross section for a given neutrino energy ω is

$$\sigma(\omega) = Tr(\boldsymbol{\alpha}\cdot\boldsymbol{\sigma}) \tag{3.18}$$

so that according to (3.12)

$$\overline{\sigma} = \int_{\omega_0}^\infty d\omega \cdot \omega^2 \cdot \varrho(\omega) \cdot \sigma(\omega). \tag{3.12'}$$

The important quantity in this formulation obviously is $\boldsymbol{R}^N$.

It is also possible to express lifetime τ^N and β^--spectrum $N^N(W)$ in terms of $\boldsymbol{R}^N$,

$$\left.\begin{aligned} 1/\tau^N &= \frac{1}{T}\sum_{ls}\sum_{\vec{q}}\sum_{km}\int d\mathfrak{p}\,|S^N_{ls\vec{q}}|^2 = \frac{1}{\pi}\int_0^\infty d\omega\cdot\omega^2\, Tr\,\boldsymbol{R}^N \\ &= \int_0^\infty d\omega\, N^N(W_N-\omega)\,. \end{aligned}\right\} \tag{3.19}$$

$$N^N(W) = \frac{1}{\pi}(W_N - W)^2\, Tr\,\boldsymbol{R}\,(W_N - W)\,. \tag{3.20}$$

An other quantity of interest is the polarization vector for the pile neutrinos.

We can write

$$\sum_l a_{ls,\,ls'} = \frac{1}{2}\,(1 + \vec{P}\vec{\sigma})_{ss'} \tag{3.21}$$

where σ_1, σ_2, σ_3 are the Pauli spin matrices and the coordinate system is such that $\vec{q} = (0, 0, \omega)$. Then from (3.21)

$$\frac{1}{2}\,(P_1 \pm i\,P_2) = \sum_l a_{l\pm,\,l\mp};\quad P_3 = \sum_l (a_{l+,\,l+} - a_{l-,\,l-})\,. \tag{3.22}$$

Similarly a polarization $\vec{P}^N$ for neutrinos from the decay (3.1) can be defined with the matrix

$$\boldsymbol{a}^N = \boldsymbol{R}^N / Tr\cdot\boldsymbol{R}^N \tag{3.16'}$$

instead of (3.16).

It should be mentioned that there is complete equivalence between this formulation and the method of double-processes described in ref. 5. Indeed the matrix element for the double-process is (in VT-normalization)

$$S_2 = \sum_{ls}\sum_{\vec{q}} S^N_{ls\vec{q}}\, S^{\mathrm{abs}}_{ls\vec{q}}$$

and the cross section is given by the probability for the double-process divided by the probability for neutrino emission:

$$\bar{\sigma} = \frac{V}{T}\,\Sigma\,|S_2|^2 / \Sigma\,|S^N|^2$$

(Σ means summation over all final state variable and averaging over all initial state variables). Since the summation over the intermediate state variables $ls\vec{q}$ is carried out with the amplitudes S and not with the probabilities $|S|^2$ (coherent summation), interference phenomena are possible and are exhibited in non-diagonal terms of the density matrix.

4. Formal evaluation of Density Matrix

We shall first calculate $\boldsymbol{R}^N$ for an allowed decay. The modifications to get the general case will then be apparent. For allowed decays only the S-wave part $\chi^0_{k,m}$ for $k = \pm 1$ of the electron wave function $\chi_{k,m}$ is important.

In the representation

$$\gamma_4 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad \gamma_5 = \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{\gamma} = i \begin{pmatrix} 0 & -\vec{\sigma} \\ \vec{\sigma} & 0 \end{pmatrix} \tag{4.1}$$

we have

$$\left.\begin{aligned} \chi^0_{+1,+\frac{1}{2}} &= -f_{+1} \begin{pmatrix} \alpha \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \chi^0_{+1,-\frac{1}{2}} = +f_{+1} \begin{pmatrix} \beta \\ 0 \end{pmatrix} \\ \chi^0_{-1,+\frac{1}{2}} &= -ig_{-1} \begin{pmatrix} 0 \\ \alpha \end{pmatrix}, \quad \chi^0_{-1,-\frac{1}{2}} = +ig_{-1} \begin{pmatrix} 0 \\ \beta \end{pmatrix} \end{aligned}\right\} \tag{4.2}$$

where $\alpha = \binom{1}{0}$, $\beta = \binom{0}{1}$.

For the neutrino we may without loss of generality write $\vec{q} = (0, 0, \omega)$. It then follows, apart from a phase factor,

$$\overline{v}_+ = 2^{-\frac{1}{2}} (\beta, \beta), \quad \overline{v}_- = 2^{-\frac{1}{2}} (\alpha, -\alpha). \tag{4.3}$$

Furthermore, the connection between the relevant matrix elements (3.4) and the usual Fermi and Gamow-Teller matrix elements may be written

$$\left.\begin{aligned} M_F &= \int d^3 x \, \Phi_s = \int d^3 x \, \Phi_V \\ \vec{j} \, M_{GT} &= \int d^3 x \, \vec{\Phi}_T = \int d^3 x \, \vec{\Phi}_A . \end{aligned}\right\} \tag{4.4}$$

Here $\vec{j}$ is a unit vector with the property

$$\langle \vec{j} \rangle_I = 0, \qquad \langle j_k \, j_{k'} \rangle_I = \frac{1}{3} \delta_{kk}$$

where $\langle \rangle_I$ means averaging over initial nuclear states. Finally, the radial functions f_{+1}, g_{-1} in (4.2) taken, as usual, at the nuclear radius give rise to the expressions

$$\left.\begin{aligned} |f_{+1}|^2 + |g_{-1}|^2 &= \frac{p^2}{2\pi^2} \cdot F_0 (Z, W) \cdot \frac{1+\gamma}{2} \\ \frac{|f_{+1}|^2 - |g_{-1}|^2}{|f_{+1}|^2 + |g_{+1}|^2} &= \gamma \cdot \frac{m}{W} \; ; \; \gamma \equiv \sqrt{1 - \alpha^2 Z^2} \end{aligned}\right\} \tag{4.5}$$

where $F_0(Z, W)$ is the usual Fermi function and α is the fine structure constant. With the help of these formulae a straight forward calculation of (3.6) with (3.3, 4) yields

$$\left.\begin{aligned} \boldsymbol{R}^N (\omega) = (2\pi)^{-2} W p F_0 (Z, W) \frac{1+\gamma}{2} \Big\{ & (\boldsymbol{C}^{SS} + \boldsymbol{C}^{VV}) |M_F|^2 + \\ & + (\boldsymbol{C}^{TT} + \boldsymbol{C}^{AA}) |M^{GT}|^2 + \gamma \frac{m}{W} [(\boldsymbol{C}^{SV} + \boldsymbol{C}^{VS}) |M_F|^2 + \\ & + (\boldsymbol{C}^{TA} + \boldsymbol{C}^{AT}) |M_{GT}|^2] \Big\} \; ; \; W = W_N - \omega \end{aligned}\right\} \tag{4.6}$$

where the matrix C^{ij} is defined by the elements

$$C^{ij}_{l+,\,l'+} \equiv G_{li} G^*_{l'j}, \quad C^{ij}_{l-,\,l'-} \equiv \pm F_{li} F^*_{l'j} \begin{cases} l = l' \\ l \neq l' \end{cases} \tag{4.7}$$

$$C^{ij}_{l+,\,l'-} = C^{ij}_{l-,\,l'+} = 0. \tag{4.7'}$$

Remembering the invariants defined in (2.15, 16) we see that

$$\sum_l C^{ij}_{l+\,l+} = A^+_{ji}, \quad \sum_l C^{ij}_{l-,\,l-} = A^-_{ji}, \quad Tr\, \boldsymbol{C}^{ij} = 2\, K_{ji}. \tag{4.8}$$

Thus we conclude from (3.19, 20) that β-spectra and lifetimes for allowed transitions depend on the coupling constants through the invariants $K_{SS} + K_{VV}$, $K_{TT} + K_{AA}$, $K_{SV} + K_{VS}$, $K_{TA} + K_{AT}$.

From (4.7') it is seen that states of different spin do not interfere. We shall now show that this is still the case using the general expression (3.3) of the matrix element. Indeed, (3.6) may be written in the form

$$R^N_{ls,\,l's'} = (\bar{v}_s(\vec{q})\, X_{ls,\,l's'}\, (\vec{q})\, \bar{v}^*_{s'}(\vec{q})) \tag{4.9}$$

where $X_{ls,\,l's'}$ can be expressed as a linear combination of the 16 Dirac matrices

$$X_{ls,\,l's'} = \sum_{A=1}^{16} x^{(A)}_{ls,\,l's'} \gamma^{(A)}. \tag{4.10}$$

Now in $R^N_{ls,\,l's'}$ all directional and spin variables have been averaged out except $\vec{q}$, s. Therefore $R^N_{ls,\,l's'}$ has to be a scalar with respect to 3-dimensional rotations of the coordinate system.

It follows that $\boldsymbol{X}$ is of the form

$$\boldsymbol{X} = \boldsymbol{x}^{(1)} \cdot 1 + \boldsymbol{x}^{(2)} \cdot \gamma_4 + \boldsymbol{x}^{(3)} \gamma_5 + \boldsymbol{x}^{(4)} \gamma_4 \gamma_5 \tag{4.10'}$$

where the $\boldsymbol{x}^{(A)}$ depend on ω only. But with this expression it is easy to see from (4.1, 3) that (4.9) vanishes unless $s = s'$,

$$R^N_{ls,\,l's'} = \delta_{ss'} R^N_{is,\,l's} \tag{4.11}$$

which proves our statement above. Furthermore, from (3.3) and (2.12) it is seen that $R^N_{ls,\,l's}$ contains the coupling constants in the form (4.7). Thus we can write

$$R^N_{l\pm,\,l'\pm}(\omega) = \sum_{ij} f^N_{ij\pm}(\omega)\, C^{ij}_{l\pm,\,l'\pm}$$

where the f's are independent of the coupling constants and consequently independent of l, l'. Next we want to show that the f's are also independent of $s = \pm$. For this we consider a space reflexion,

$$\chi'(\vec{x}) = i\gamma_4 \chi(-\vec{x}) \qquad v'_\pm(\vec{q}) = -i v_\pm(-\vec{q})\gamma_4.$$

(Here the phase is fixed because we have used $u = v^c$, see footnote 12.)

Then from (3.3) we have, remembering (2.12)

$$T^{N'}_{l+,\vec{q}} = \sum_i G_{li} \int d^3x \, \Phi'_i(\vec{x}) e^{-i\vec{q}\vec{x}} (\bar{v}_+(-\vec{q}) \gamma_4 O_i \gamma_4 \chi(-\vec{x}))$$

and similarly for $T^{N'}_{l-,\vec{q}}$. But

$$\Phi'_i(\vec{x}) \gamma_4 O_i \gamma_4 = \eta \Phi_i(-\vec{x}) O_i; \qquad |\eta| = 1; \text{ all } i$$

so that

$$T^{N'}_{ls,\vec{q}} = \eta \cdot T^{N}_{ls,\vec{q}}.$$

Now according to (3.6) $R^N_{ls,ls}$ is a summation over $|T^N_{ls\vec{q}}|^2$ hence

$$R^{N'}_{ls,ls} = R^N_{ls,ls}.$$

But then the coefficients $x^{(3)}_{ls,ls}$, $x^{(4)}_{ls,ls}$ in (4.10′) have to be zero. It follows from (4.13) that

$$(\bar{v}_+ X_{l+,l+} \bar{v}^*_+) = (\bar{v}_- X_{l+,l+} \bar{v}^*_-) = x^{(1)}_{l+,l+}$$

Consequently

$$\sum_{ij} f^N_{ij+} C^{ij}_{l+,l+} = \sum_{ij} f^N_{ij-} C^{ij}_{l+,l+}$$

and similarly with $C^{ij}_{l-,l-}$. Therefore we can introduce

$$f^N_{ij} = \frac{1}{2}(f^N_{ij+} + f^N_{ij-})$$

so that

$$\boldsymbol{R}^N(\omega) = \sum_{ij} f_{ij}(\omega) \cdot \boldsymbol{C}^{ij} \tag{4.12}$$

where (4.11) is fulfilled due to (4.7′).

It is seen from (4.8, 12) that spectrum and lifetime for any β^--decay depends on the coupling constants only through the invariants K_{ij}. Indeed from (3.19, 20) we have

$$1/\tau^N = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty d\omega \cdot \omega^2 \sum_{ij} f^N_{ij}(\omega) \cdot K_{ji} \tag{4.13}$$

$$N^N(W) = \frac{2}{\pi} (W_N - W)^2 \sum_{ij} f^N_{ij}(W_N - W) K_{ji}. \tag{4.14}$$

Since (4.13) is real it follows that

$$f^{N*}_{ij}(\omega) = f^N_{ji}(\omega). \tag{4.15}$$

With the definition (3.9) of the averaging procedure characteristic of the pile it follows from (4.12)

$$\langle \boldsymbol{R}(\omega) \rangle = \sum_{ij} \langle f_{ij}(\omega) \rangle \boldsymbol{C}^{ij}. \tag{4.12′}$$

Then the neutrino spectrum (3.14) is

$$\varrho(\omega) = \omega^2 \sum_{ij} \langle f_{ij}(\omega) \rangle K_{ji} / \int_0^\infty d\omega \cdot \omega^2 \langle f_{ij}(\omega) \rangle K_{ji}. \qquad (4.16)$$

It again depends on the coupling constants only through the K_{ij}. The expression for the matrix (3.16) is

$$\boldsymbol{a}(\omega) = \sum_{ij} \langle f_{ij}(\omega) \rangle \boldsymbol{C}^{ij} / 2 \sum_{ij} \langle f_{ij}(\omega) \rangle K_{ji}. \qquad (4.17)$$

For the conventional and the two-component theory the nonvanishing elements of $\boldsymbol{a}$ take the values given in (2.5, 6). Furthermore, from the property (4.11), that interference between the states of different spin s is absent, it follows that the neutrino polarization is always longitudinal. Indeed, with (3.22), (4.17) and (4.8), (2.17) one gets

$$P_1 = P_2 = 0, \quad P_3 = P(\omega) = \sum_{ij} \langle f_{ij}(\omega) \rangle L_{ji} / \sum_{ij} \langle f_{ij}(\omega) \rangle K_{ji}. \qquad (4.18)$$

Finally, we mention that from (4.13) an average lifetime for the pile in equilibrium is defined as

$$\left\langle \frac{1}{\tau} \right\rangle = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty d\omega \cdot \omega^2 \sum_{ij} \langle f_{ij}(\omega) \rangle K_{ji}. \qquad (4.13')$$

5. Evaluation of cross section

For not too high values of ω, say $\omega \leq 100 \cdot m$, the expression (3.11) for the cross section matrix simplifies because energy-momentum conservation (target proton at rest) gives

$$|\vec{p}_n| \leq 2\omega - \omega_0 + m \ll m_n \qquad (5.1)$$

where ω_0 is the threshold defined in (3.13). From the experiment of MUEHLHAUSE and OLEKSA[10]) we take the information that the neutrino spectrum $p(\omega)$ falls off at energies $\omega \cong 13$ MeV $\simeq 26 \cdot m$ so that (5.1) is largely fulfilled and we can replace E_n by m, in the δ-function of (3.11).

Thus

$$\sigma_{l\,s,\,l's'}(\omega) = \left[\frac{p' W'}{2\pi} \sum_{pne} T^{\text{abs}*}_{l\,s\,q} T^{\text{abs}}_{l'\,s'\,q} \right]_{W' = m + \omega - \omega_0}. \qquad (5.2)$$

The further evaluation with (2.10) is very similar to that one of the density matrix for an allowed decay given in the preceeding section. In fact the sum in (3.6) changes into the spin sum in the above expression by the formal substitutions

$$|M_F|^2 \to 1, \quad |M_{GT}|^2 \to 3, \quad |f_{+1}|^2 \to \frac{W' - m}{W'}, \quad |g_{-1}|^2 \to \frac{W' + m}{W'}.$$

*

Thus one reads from (4.6)

$$\left.\begin{aligned}\boldsymbol{\sigma}(\omega) = \frac{p'W'}{2\pi}\Big\{ (\boldsymbol{C}^{SS} + \boldsymbol{C}^{VV}) + 3\,(\boldsymbol{C}^{TT} + \boldsymbol{C}^{AA}) - \\ - \frac{m}{W'}\left[(\boldsymbol{C}^{SV} + \boldsymbol{C}^{VS}) + 3\,(\boldsymbol{C}^{TA} + \boldsymbol{C}^{AT})\right]\Big\};\ W' = m + \omega - \omega_0.\end{aligned}\right\} \tag{5.3}$$

Using this expression together with (4.17) we see that $\sigma(\omega)$, (3.18), is a linear combination of terms $Tr\,\boldsymbol{C}^{ij}\,\boldsymbol{C}^{i'j'}$. From the invariance principle we know that not only these terms but even $\sum_{l'} C^{ij}_{ls,\,l's}\,C^{i'j'}_{l's,\,ls}$, for both signs of s, are invariant. Indeed, according to (2.16) and (4.8),

$$\sum_{ll'} C^{ij}_{l+,\,l'+}\,C^{i'j'}_{l'+,\,l+} = A^{+*}_{ij'}\,A^{+}_{ji'};\quad \sum_{ll'} C^{ij}_{l-,\,l'-}\,C^{i'j'}_{l'-,\,l-} = A^{-*}_{ij'}\,A^{-}_{ji'} \tag{5.4}$$

and with (2.15, 17)

$$\frac{1}{2}\,Tr\,\boldsymbol{C}^{ij}\,\boldsymbol{C}^{i'j'} = K^{*}_{ij'}\,K_{ji'} + L^{*}_{ij'}\,L_{ji'}. \tag{5.5}$$

To correct for the permutation of indices on the right side we introduce the bilinear invariants

$$\Lambda_{ij\,|\,j'i'} \equiv K^{*}_{ij}\,K_{j'i'} - K^{*}_{ij'}\,K_{ji'} + L^{*}_{ij}\,L_{j'i'} - L^{*}_{ij'}\,L_{ji'} = -\Lambda_{ij'|ji'} \tag{5.6}$$

and remark that the vanishing of the Λ's is a necessary invariant condition for lepton charge conservation[15]). Thus

$$\frac{1}{2}\,Tr\,\boldsymbol{C}^{ij}\,\boldsymbol{C}^{i'j'} = K_{ji}\,K_{j'i'} + L_{ji}\,L_{j'i'} - \Lambda_{ij\,|\,j'i'} \tag{5.5'}$$

and according to (3.18), (4.17, 18), (5.3)

$$\sigma(\omega) = \sigma(\omega; K) + P(\omega)\cdot\sigma(\omega; L) - \Lambda(\omega; \Lambda)\,/\sum_{ij}\langle f_{ij}\rangle\,K_{ji} \tag{5.7}$$

where

$$\left.\begin{aligned}\sigma(\omega; K) = \frac{p'W'}{2\pi}\Big\{ (K_{SS} + K_{VV}) + 3\,(K_{TT} + K_{AA}) - \\ - \frac{m}{W'}\left[(K_{SV} + K_{VS}) + 3\,(K_{TA} + K_{AT})\right]\Big\};\ W' = m + \omega - \omega_0\end{aligned}\right\} \tag{5.7'}$$

$$\left.\begin{aligned}\Lambda(\omega_j \Lambda) = \frac{p'W'}{2\pi}\sum_{ij}\langle f_{ij}\rangle\Big\{ (\Lambda_{ij\,|SS} + \Lambda_{ij\,|VV}) + 3 \\ (\Lambda_{ij\,|TT} + \Lambda_{ij\,|AA}) - \frac{m}{W'}\left[(\Lambda_{ij\,|SV} + \Lambda_{ij\,|VS}) + 3\,(\Lambda_{ij\,|TA} + \Lambda_{ij\,|AT})\right]\Big\} \\ W' = m + \omega - \omega_0\end{aligned}\right\} \tag{5.7''}$$

and $\sigma(\omega; L)$ is (5.7′) with the L_{ij} replacing the K_{ij}. The total cross section is according to (3.12′)

$$\bar{\sigma} = \{\Sigma(K) + \Sigma(L) - \bar{\Delta}(\Delta)\} / \left\langle \frac{1}{\tau} \right\rangle \tag{5.8}$$

where

$$\left.\begin{aligned} \Sigma(K) &= \frac{2}{\pi} \int_{\omega_0}^{\infty} d\omega \cdot \omega^4 \sum_{ij} \langle f_{ij} \rangle K_{ji} \sigma(\omega; K) \\ \bar{\Delta}(\Delta) &= \frac{2}{\pi} \int_{\omega_0}^{\infty} d\omega \cdot \omega^4 \Delta(\omega; \Delta) \end{aligned}\right\} \tag{5.8′}$$

and $\langle 1/\tau \rangle$ is given by (4.13′).

To get an idea of the dependence of (5.8) on the invariants we take the conventional theory as a reference theory. Its invariant characterization is[15])

$$L^c_{ij} = 0; \quad \Delta^c_{ij\,|\,j'i'} = 0 \tag{5.9}$$

(c for conventional). Taking all β-spectra $N^N(W)$, lifetimes τ^N and the neutrino spectrum $\varrho(\omega)$ as given empirically, we conclude from (4.13, 14, 16) that all K_{ij} are "measurable" and, therefore, constant with respect to any change of the theory (i.e. its coupling parameters),

$$K_{ij} = K^c_{ij}, \qquad \text{all } ij \text{ [16])}. \tag{5.10}$$

Thus

$$\sigma^c(\omega) = \sigma(\omega; K) \text{ [17])} \tag{5.11}$$

and

$$\bar{\sigma} / \bar{\sigma}^c = 1 + \{\Sigma(L) + \bar{\Delta}(\Delta)\} / \Sigma(K). \tag{5.12}$$

Since the invariant characterization of the two-component theory is[15]) $L_{ij} = -K_{ij}$ (or $L_{ij} = +K_{ij}$), $\Delta_{ij\,|\,j'i'} = 0$ we find the previous result (2.9) as a special case. It does not, however, follow in general that the value 2 is an upper limit to (5.12).

6. Discussion of experiments

The principal result (3.12′) and (5.7) shows that for the calculation of the theoretical total cross section $\bar{\sigma}$ three invariant functions of ω are needed in the general case: the spectrum $\varrho(\omega)$, the polarization $P(\omega)$ which is a measure of parity non-conservation and the function

$$L(\omega) = \Delta(\omega; \Delta) / \sum_{ij} \langle f_{ij}(\omega) \rangle K_{ji} \tag{6.1}$$

which is a measure of lepton charge non-conservation. It is important to note that the information from parity experiments available at the moment is not sufficient to fix $P(\omega)$ and $L(\omega)$; and consequently also

the value of the relative cross section σ/σ^c is not fixed. The parity experiments tell us that[18])

$$A_{SS}^{+} = A_{TT}^{+} = A_{VV}^{-} = A_{AA}^{-} = 0 \tag{6.2}$$

or equivalently

$$\left.\begin{aligned} L_{SS} &= -K_{SS}\,, \qquad L_{TT} = -K_{TT} \\ L_{VV} &= +K_{VV}\,, \qquad L_{AA} = +K_{AA}\,. \end{aligned}\right\} \tag{6.2'}$$

But this is not all that can be said since from the inequalities[8])

$$|A_{ij}^{+}|^2 \leq A_{ii}^{+} A_{jj}^{+}\,, \quad |A_{ij}^{-}|^2 \leq A_{ii}^{-} A_{jj}^{-} \tag{6.3}$$

it follows that

$$A_{Si}^{+} = A_{Ti}^{+} = A_{Vi}^{-} = A_{Ai}^{-} = 0, \text{ all } i \tag{6.4}$$

or also

$$\left.\begin{aligned} K_{SV} = K_{SA} = K_{TV} = K_{TA} &= 0 \\ L_{SV} = L_{SA} = L_{TV} = L_{TA} &= 0 \end{aligned}\right\} \tag{6.4'}$$

which is much more than the vanishing of the Fierz terms

$$(\mathrm{Re}\, K_{SV} = \mathrm{Re}\, K_{TA} = 0)$$

Unless recoil experiments will show that the coupling is pure (STP) or pure (VAP) the indeterminacy of $P(\omega)$ and $L(\omega)$ even persists if all neutrinos came from allowed decays, as is seen from (4.6). Therefore, all three functions $\varrho(\omega)$, $P(\omega)$ and $L(\omega)$ should in principle be determined from experiment.

The Muehlhause and Oleksa experiment[11]) does not measure $\varrho(\omega)$ directly, but the averaged β^--spectrum (see (3.9, 20))

$$\langle N(W)\rangle = \sum_N \lambda_N N^N(W)$$

whereas according to (3.14, 20) $\varrho(\omega)$ may be written as

$$\varrho(\omega) = \sum_N \lambda_N \Theta(W_N - \omega - m)\, N^N(W_N - \omega) \Big/ \left\langle \frac{1}{\tau} \right\rangle .$$

The connection between these two spectra is rather involved unless the symmetry property

$$N^N(W) = N^N(W_N - W) = \Theta(W - m) \cdot N^N(W)$$

is used which, however, is certainly violated at the endpoints $W = m$ and $W = W_N$. Though in ref. 11 account is taken of this asymmetry the resulting neutrino spectrum is probably not very accurate.

In the hope to get a direct determination of $\varrho(\omega)$ Reines has recently made an absorption experiment in which the positron energy W' is

discriminated[19]). The corresponding cross section follows from (3.11, 18, 12′) by suppressing the integration over W' in (3.11),

$$\sigma_e(W') = \omega^2 \varrho(\omega) \cdot \sigma(\omega); \quad W' = m + \omega - \omega_0. \tag{6.5}$$

From (5.7) it is seen, however, that $\varrho(\omega)$ is determined only if

$$P(\omega) = P = \text{const.}, \; L(\omega) = 0.$$

According to (4.18) this condition leads to a theory with

$$L_{ij} = P \cdot K_{ij} \quad [20]) \tag{6.6}$$

which reduces to the two-component theory if the experimental information (6.2′) is taken into account.

Inspite of the lack of knowledge about $P(\omega)$ and $L(\omega)$ it follows that a measurement of $\sigma_e(W')$ gives a good test of the two-component theory. Indeed, if first $\varrho(\omega)$ is determined with the assumption $P = -1$ (or $P = +1$), $L(\omega) = 0$ and then is used to calculate $\bar{\sigma}$, an agreement of this value with $\int dW' \sigma_e(W')$ strongly supports the two-component theory. A discrepancy, on the other hand, means that $P(\omega)$ (and even $L(\omega)$) should be determined, too.

We would like to point out that assuming lepton conservation the measurement of $P(\omega)$ is, in principle, possible in an absorption experiment which discriminates not only W' but also the asymmetry in the angle Θ between the neutrino and positron momenta $\vec{q}$ and $\vec{p}'$. (Of course the discrimination of the longitudinal spin of the positron could also be used, but such an experiment would be even more difficult.) We give here the result of a calculation of the corresponding cross section $\sigma_e(W', \Theta)$ which follows from (3.11, 12) by suppressing the integration over W' and Θ. Without any assumptions about the Λ's we get instead of (6.5), using (5.5′)

$$\left.\begin{aligned} \sigma_e(W', \Theta) \sin\Theta \, d\Theta = \tfrac{1}{2} \omega^2 \varrho(\omega) \sigma(\omega) \cdot (1 + \alpha(\omega) \cos\Theta) \sin\Theta \, d\Theta \\ W' = m + \omega - \omega_0; \end{aligned}\right\} \tag{6.7}$$

where the asymmetry parameter α is given by

$$\left.\begin{aligned} \alpha(\omega) = \frac{p'^2}{2\pi\sigma(\omega)} \{(K_{TT} - K_{AA} - K_{SS} + K_{VV}) + \\ + P(\omega)(L_{TT} - L_{AA} - L_{SS} + L_{VV}) - \sum_{ij} \langle f_{ij} \rangle \cdot \\ \cdot (\Lambda_{ij|TT} - \Lambda_{ij|AA} - \Lambda_{ij|SS} + \Lambda_{ij|VV}) / \sum_{ij} \langle f_{ij} \rangle K_{ji} \}. \end{aligned}\right\} \tag{6.8}$$

If in this expression we put all $\Lambda = 0$ (lepton conservation) and use the consequences (6.2′, 4′) of the empirical facts, we arrive at the formula

$$\left.\begin{aligned} \alpha(\omega) = \frac{p'}{W'} \{(K_{TT} - K_{AA} - K_{SS} + K_{VV}) + \\ + P(\omega)\,(K_{TT} + K_{AA} - K_{SS} - K_{VV})\}/\{(K_{SS} + K_{VV}) + \\ + 3(K_{TT} + K_{AA}) + P(\omega)[(K_{VV} - K_{SS}) + 3(K_{AA} - K_{TT})]\}. \end{aligned}\right\} \quad (6.8')$$

from which the neutrino polarization $P(\omega)$ may be deduced. Note that in the two-component theory $\alpha(\omega) = 0$.

Acknowledgments

I am very much indebted to Professor W. Pauli for stimulating discussions. I wish to thank also Drs. G. Lüders for an interesting correspondence and for a preprint of his paper and K. Alder for interesting discussions.

References

[1]) Cowan, Reines, Harrison, Kruse, Mc Guire, Science *124*, 103 (1956); F. Reines and C. L. Cowan, Nature *178*, 446 (1956); Physics Today *10*, No. 8, p. 12 (1957).

[2]) R. Davis, Phys. Rev. *97*, 766 (1955); Bulletin of the American Phys. Soc. *1*, 219 (1956).

[3]) T. D. Lee and C. N. Yang, Phys. Rev. *105*, 1671 (1957); A. Salam, Nuovo Cimento *5*, 299 (1957); L. Landau, Nucl. Phys. *3*, 127 (1957).

[4]) W. Pauli, Nuovo Cimento *6*, 204 (1957).

[5]) C. P. Enz, Nuovo Cimento *6*, 250 (1957).

[6]) D. L. Pursey, Nuovo Cimento *6*, 266 (1957).

[7]) S. Kahana and D. L. Pursey, Nuovo Cimento *6*, 1469 (1957).

[8]) G. Lüders, Nuovo Cimento *7*, 171 (1958).

[9]) This is easily verified from the transformation property (see footnote 12)

$$(c'_{1s}, c'_{2s}) = (c_{1s}, c_{2s}) \cdot U_s; \quad \begin{pmatrix} c'^{*}_{1s} \\ c'^{*}_{2s} \end{pmatrix} = U_s^{-1} \cdot \begin{pmatrix} c^{*}_{1s} \\ c^{*}_{2s} \end{pmatrix}$$

where, in the notation of ref. 4, U_s is the unitary matrix

$$U_{\pm} = e^{\pm i\alpha} \begin{pmatrix} a^{*}, \pm b \\ \mp b^{*}, a \end{pmatrix}; \quad |a|^2 + |b|^2 = 1.$$

[10]) In connection with parity violation the terms "right" and "left helicity" have been introduced to design the projection of the neutrino field on the two spin states

$$\psi_\nu^R = \frac{1}{2}(1 - \gamma_5)\,\psi_\nu; \quad \psi_\nu^L = \frac{1}{2}(1 + \gamma_5)\,\psi_\nu$$

and similarly for ψ_ν^c. The corresponding coupling constants are simply related to the ones used in this paper,

$$C_{Ri} = F_{1i}^*, \quad C_{Li} = G_{1i}^*, \quad D_{Ri} = F_{2i}^*, \quad D_{Li} = -G_{2i}^*.$$

The use of the F's and G's is somewhat better adapted for our purpose.

[11]) An attempt to measure the neutrino spectrum from uranium fission products is reported by C. O. Muehlhause and S. Oleksa, Phys. Rev. *105*, 1332 (1957).

[12]) We use

$$\psi = (2\pi)^{-3/2} \int d^3 p \sum_s (c_{1s}^* (\vec{p}) u_s (\vec{p}) e^{-i(px)} + c_{2s} (\vec{p}) v_s (\vec{p}) e^{+i(px)}); \quad \bar{\psi} \equiv \psi^* \gamma_4$$

and define the spinors u, v by the equations

$$(i(\gamma p) + m) u_s (\vec{p}) = 0; \quad (i(\gamma p) - m) v_s (\vec{p}) = 0$$

$$(\mp i (\vec{\Sigma}\vec{p}) + |\vec{p}|) u_\pm (\vec{p}) = 0; \quad (\pm i (\vec{\Sigma}\vec{p}) + |\vec{p}|) v_\pm (\vec{p}) = 0$$

$$\vec{\Sigma} \equiv i\gamma_4\gamma_5\vec{\gamma}; \quad (u_s^* u_s) = (v_s^* v_s) = 1; \quad s = \pm.$$

Furthermore, we fix relative phases by putting

$$v_s = u_s^c \equiv C^{-1} \bar{u}_s; \quad u_s = v_s^c \equiv C^{-1} \bar{v}_s.$$

[13]) It would be easy and perhaps more adapted to experiments to introduce a geometry factor $\gamma(\vec{q})$ which falls off with $|(\vec{q}/\omega) - \vec{e}|$. Then $\sum_{\vec{p}}'$ would have to be replaced by $\sum_{\vec{q}} \gamma(\vec{q})$, summed over all $\vec{q}$. However, this only would complicate the formulae without giving any improvement.

[14]) Since according to the liquid drop model fission products lie on the neutron rich side of the $(A-Z, Z)$ — curve for stable nuclei, β^+-decay and K-capture is practically absent in the pile. Moreover for lepton conservation the neutrinos from β^+-decay are in the wrong charge state for the Cowan Reines experiment. Mesonic and hyperonic neutrino production is of course negligible.

[15]) For an invariant characterization of particular properties of H_{int} see ref. 8.

[16]) If among the functions $f_{ij}^N(\omega)$ there exist linear relations, independent of N, only certain linear combinations of the K_{ij} are "measurable" and (5.10) is correspondingly weakened. This however does not affect the result (5.12). One example are the reality conditions

$$f_{ij}^N(\omega) = f_{ij}^{N*}(\omega), \text{ all } ij \text{ and } N$$

combined with (4.15). In this case the measurable expressions are Re K_{ij} and (5.10) is replaced by

$$Re\, K_{ij} = Re\, K_{ij}^c.$$

As is seen from (4.6) such reality conditions hold for allowed decays. They are also fulfilled for first forbidden decays as may be seen from the expressions $b_0(L, L)$ in the paper by K. Alder, B. Stech and A. Winther, Phys. Rev. *107*, 728 (1957). We believe that they can be proved for the general case using time reversal, similarly to the space reflexion argument given in section 4.

[17]) With only S- and T-coupling (5.7′, 11) reduces to formula (2) of ref. 11 in which, however, there is misprint ($W' = \omega - \omega_0$ instead of $W' = m + \omega - \omega_0$).

[18]) See for instance the tables prepared by C. S. Wu in "Proceedings of the International Conference on Nuclear Structure at the Weizmann Institute, Rehovoth, Israel, September 1957". (North-Holland Publishing Co., in press.)

[19]) I am very much indebted to Dr. Reines for information on this and related experiments.

[20]) If there are linear dependences among the functions $\langle f_{ij}(\omega) \rangle$ the conditions (6.6) are weakened. As an example we mention the reality conditions discussed in footnote 16, in which case (6.6) is replaced by

$$Re\, L_{ij} = P \cdot Re\, K_{ij}.$$

The conclusion is, however, the same.

Note added in proof: In an ingenious experiment Goldhaber, Grodzins and Sunyar (to be published in Phys. Rev.) have succeeded in a direct determination of the neutrino polarization P in an allowed GT β^+-decay. They find $P = -1$ which, in accord with recent recoil experiments by Herrmannsfeldt, Stähelin and Allen (Bulletin of the American Phys. Soc. *3*, 52 (1958)) with β^+-emitters, rules out an ST-coupling. The interest in an independ determination of P for β^--decays of course persists.

© 1958 by Schweizerische Physikalische Gesellschaft
Société Suisse de Physique. – Società Fisica Svizzera
Nachdruck verboten – Tous droits réservés – Printed in Switzerland

$(n, 2n)$-Reaktion an Be^9 für eine Neutronenenergie von 3,7 MeV

von **R. Wagner** und **P. Huber**, Universität Basel

(23. XI. 1957)

Zusammenfassung. Der Mechanismus der $(n, 2n)$-Reaktion an Be^9 bei einer Neutronen-Energie von 3,7 MeV wird auf Grund des Spektrums der emittierten Neutronen ermittelt. Als Neutronenquelle dient die d-d-Reaktion bei Verwendung eines dicken rotierenden D_2O-Eistarget. Das Spektrum der unter $\varphi = 90°$ im Laborsystem gegen die Einfallsrichtung der d-d-Neutronen emittierten Reaktionsneutronen wird mit Ilford-C_2-Platten aufgenommen. Die Struktur des Spektrums spricht für eine zeitlich getrennte Emission der beiden Neutronen, das heisst die Reaktion verläuft über die angeregten Zustände von Be^9.

Auf Grund der in den Platten gemessenen Anzahl von Protonen-Rückstoss-Spuren wurde der differentielle Querschnitt der $(n, 2n)$-Reaktion an Be^9 für $\varphi = 90°$ im Laborsystem und bei einer Neutronen-Energie von 3,7 MeV ermittelt. Er ergab sich zu:

$$\sigma_{\text{diff}}(n, 2n) = (39 \pm 8) \text{ mb/sterad}$$

1. Einleitung

Beim Beschuss von Be^9 mit Neutronen einiger MeV-Energie bildet sich nach den heutigen Vorstellungen über Kernreaktionen zunächst der Zwischenkern Be^{10} in einem angeregten Zustand. Dieser kann nach kurzer Zeit ein Neutron emittieren und Be^9 im Grundzustand (elastische Streuung) oder in einem angeregten Zustand zurücklassen. Liegt dieser angeregte Zustand über dem Grundzustand von Be^8, so ist die Möglichkeit gegeben, dass ein weiteres Neutron emittiert wird.

Es ist jedoch auch denkbar, dass beide Neutronen vom angeregten Compoundkern simultan emittiert werden. Eine dritte Möglichkeit bestünde in einer Wechselwirkung zwischen der einfallenden Partikel und dem «Leuchtneutron» des Be^9, ohne Beeinflussung des Rumpfes. Eine Entscheidung über den hier vorliegenden Reaktionsverlauf kann die Bestimmung des Neutronenspektrums geben. Werden die Neutronen nacheinander emittiert, so müssen sich im Spektrum bestimmte Gruppen bemerkbar machen, die den angeregten Zuständen von Be^9 entsprechen. Erfolgt die Emission jedoch simultan, oder haben wir

es mit einer Wechselwirkung mit dem «Leuchtneutron» zu tun, so ist eine kontinuierliche Energieverteilung der beiden Neutronen bis zu einer Maximalenergie vorhanden und es sind keine ausgezeichneten Gruppen im Spektrum zu erwarten.

2. Neutronenquelle

Als Neutronenquelle dient die *d-d*-Reaktion. In einem 1-MeV-Kaskadengenerator werden die Deuteronen beschleunigt und treffen auf ein dickes Target aus schwerem Eis. Das Experiment verlangt eine hohe Neutronenintensität, weshalb im Mittel mit 100 μA Deuteronenstrom be-

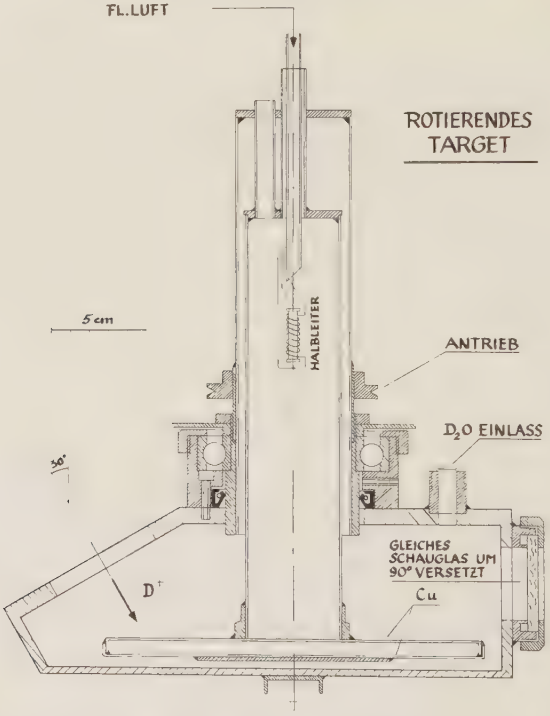


Fig. 1. Rotierendes Target.
Die Targetscheibe besteht aus Kupfer, das Gehäuse aus Messing. Um das Kugellager und die Dichtungsringe vor der tiefen Temperatur der flüssigen Luft zu schützen, ist der rotierende Teil als Dewar ausgebildet.

strahlt wurde. Bei dieser hohen Belastung sinkt die Ausbeute einer feststehenden Eisschicht innerhalb von 8 bis 10 min auf die Hälfte ab, so dass das Target nach dieser Zeit immer wieder erneuert werden muss. Es wurde deshalb ein rotierendes Target konstruiert, bei welchem eine dicke Eisschicht unter dem Deuteronenstrahl weggedreht wird (Fig. 1).

Die Neutronenausbeute wird laufend mit einem Hornyak-Detektor[1]) kontrolliert.

Das rotierende Target bedingt eine gewisse Anhäufung von Materie in der Nähe des Quellpunktes (Grosse rotierende Kupferscheibe, Kammer für flüssige Luft, Antriebsmotor usw.). Um den Einfluss auf die Halbwertsbreite des Neutronenspektrums zu bestimmen, wurde mit Ilford-C_2-Kern-Emulsions-Platten das Neutronenspektrum eines kleineren fest-

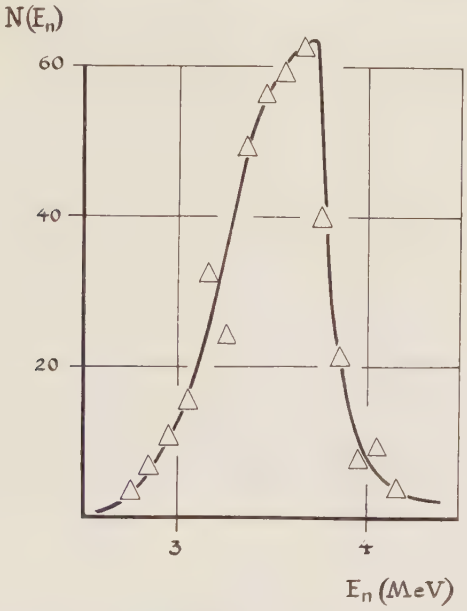


Fig. 2.

Relative Häufigkeit $N(E_n)$ des d-d-Neutronenspektrums eines kleinen feststehenden Eistargets bei einer Deuteronenenergie von 800 keV, aufgenommen mit einer Ilford-C_2-Platte unter einem Winkel von 30° gegen die Vorwärtsrichtung im Laborsystem.

stehenden Targets und des rotierenden Targets aufgenommen (Fig. 2 und 3).

Zur Bestimmung des Neutronenspektrums des rotierenden Targets wurde eine Ilford-C_2-Platte 90 min bestrahlt, bei einem mittleren Deuteronenstrom von 90 μA. Das Eistarget musste während dieser Zeit nicht erneuert werden, denn die Ausbeute sank in 90 min nur um etwa 4% (Fig. 4). Das Target wurde durch Einfrieren einer auf der Cu-Scheibe stehenden D_2O-Schicht erzeugt. Dabei ergab sich für das Spektrum des rotierenden Targets eine Halbwertsbreite von 620 keV, für das des feststehenden Targets eine Halbwertsbreite von 590 keV. Die Verbreiterung ist also nicht wesentlich.

Die Nachfüllung der flüssigen Luft zur Kühlung der Targetscheibe erfolgt automatisch. Ein NTC-Widerstand steuert den Pegelstand in der Vorratskammer des rotierenden Target. Sinkt das Niveau der flüssigen Luft unter den Halbleiter, so bewirkt die elektrische Heizung (3,5 Watt) eine Erwärmung des Steuerelementes und damit eine starke Widerstandsabnahme. Mit Hilfe einer 6J6-Röhre und eines Relais wird eine

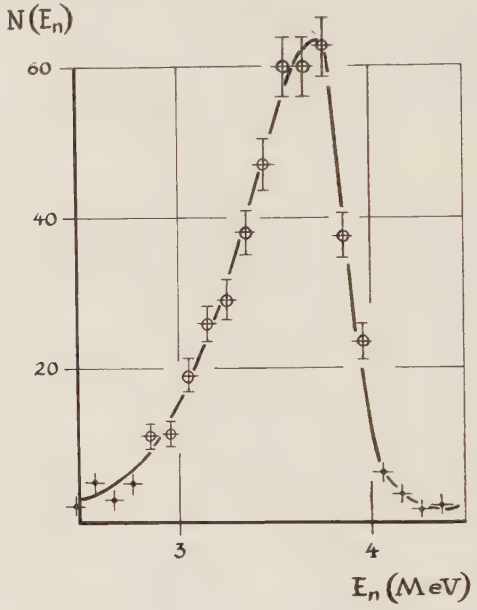


Fig. 3.

Relative Häufigkeit $N(E_n)$ des d-d-Neutronenspektrums des rotierenden Targets bei einer Deuteronenenergie von 800 keV, aufgenommen mit einer Ilford-C_2-Platte unter einem Winkel von 30° gegen die Vorwärtsrichtung im Laborsystem. Die bei den Messpunkten angegebenen Strecken entsprechen dem mittleren Fehler.

Schaltuhr gestartet, die für einstellbare Zeit einen Luftkompressor betätigt, wodurch flüssige Luft in die Kammer des rotierenden Targets nachgefüllt wird (Fig. 5). Bei einer Belastung des Targets mit 90 μA Deuteronenstrom erfolgt die Nachfüllung alle 8 min.

3. Energiespektrum

Wie bereits in der Einleitung bemerkt wurde, müssen sich im Spektrum der Neutronen, die vom angeregten Be^{10}-Kern emittiert werden, dann bestimmte Energiegruppen auszeichnen, wenn die Emission zeitlich getrennt erfolgt, das heisst die Reaktion über die angeregten Zustände von Be^9 verläuft. Der Reaktionsmechanismus wäre demnach der folgende:

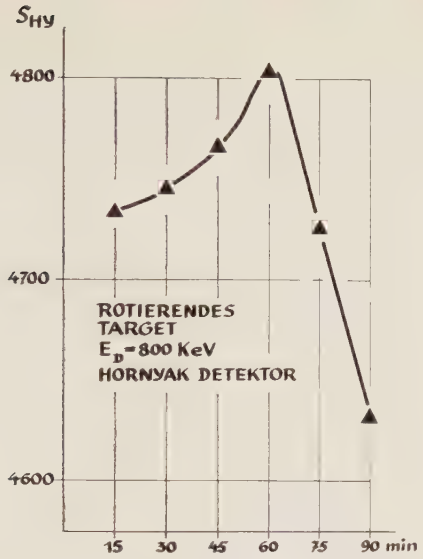


Fig. 4.

Ausbeute eines dicken rotierenden Eistargets bei einem mittleren Deuteronenstrom von 90μA und einer Deuteronenenergie von 800 keV. Die Darstellung zeigt die Monitor-Stosszahlen S_{HY} pro 15 min als Funktion der Bestrahlungszeit. Der Abfall der Neutronenintensität ist im wesentlichen auf eine Verschmutzung des Targets zurückzuführen (Ablagerung von Öldämpfen auf der Eisschicht).

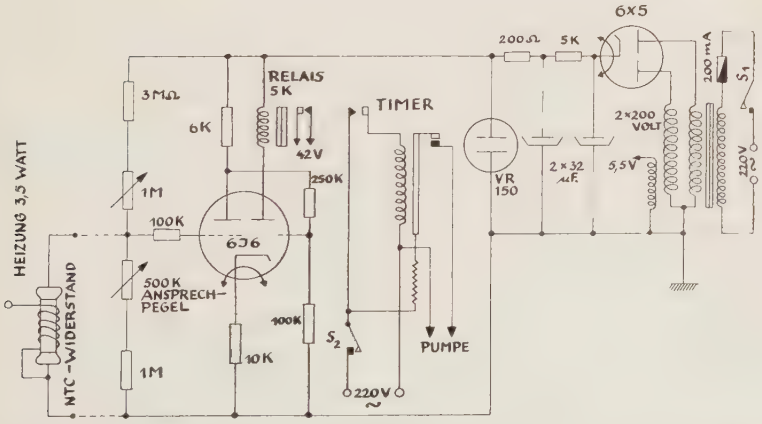


Fig. 5.

Schaltschema zur Automatik der Targetkühlung. Der NTC-Widerstand befindet sich in der flüssigen Luft-Kammer des rotierenden Targets

a) Eindringen des Neutrons n_1 in den ruhenden Targetkern Be^9 unter Bildung des angeregten Compound-Kernes Be^{10}: $n_1 + Be^9 = Be^{10*}$.

b) Emission eines Neutrons n_2, wobei der Endkern Be^9 im Grundzustand oder in einem angeregten Zustand mit der Anregungsenergie $E^*_{Be^9}$ zurückbleibt: $Be^{10*} = Be^{9*} + n_2$.

c) Die Möglichkeit zur Emission eines zweiten Neutrons n_3 ist gegeben, wenn die Anregungsenergie $E^*_{Be^9}$ über dem Grundzustand von Be^8 liegt: $Be^{9*} = Be^8 + n_3$.

Figur 6 zeigt die Niveauschemata von Be^{10}, Be^9 und Be^8 [2]) und illustriert den oben dargelegten Reaktionsmechanismus.

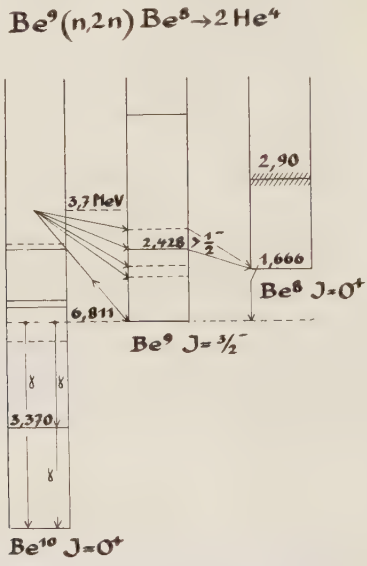


Fig. 6
Niveauschemata von Be^{10}, Be^9 und Be^8.

Zur Berechnung der im Spektrum zu erwartenden Gruppen betrachten wir zunächst die Energieverteilung der vom angeregten Compound-Kern Be^{10} emittierten Neutronen n_2. Es erweist sich, insbesondere bei der nachfolgenden Bestimmung der vom angeregten Be^9-Kern emittierten Gruppen n_3, als vorteilhaft, das Impuls-Diagramm der betreffenden Reaktion zu ermitteln. Für die Kernreaktion $n_1 + Be^9 = Be^{9*} + n_2$ liefert die Anwendung von Energie- und Impulssatz folgendes Resultat: Der geometrische Ort aller Impulsspitzen $\vec{P}_{n_2}$ ist ein Kreis mit dem Radius R, dessen Zentrum gegen das Reaktionszentrum um a verschoben ist. Die Werte von R und a ergeben sich dabei zu

$$R^2 = 1{,}62\, E_{n_1} - 1{,}80\, E^*_{Be^9} \qquad \text{(MeV)}$$
$$a = 0{,}1414\, (E_{n_1})^{1/2} \qquad \text{(MeV)}^{1/2}$$

E_{n_1} bedeutet die Energie der einfallenden Neutronen. Die Aufnahme des Neutronenspektrums erfolgt nun unter $\varphi = 90°$ gegen die Einfallsrichtung der Neutronen n_1 im Laborsystem. Im Impuls-Diagramm ist für diesen Winkel der Impulspfeil $\vec{P}_{n_2}$ Kathete eines rechtwinkligen Dreiecks mit der Hypotenuse R und der Gegenkathete a. Es gilt demnach $R^2 = a^2 + |\vec{P}_{n_2}|^2$. Daraus folgt für die Neutronenenergie E_{n_2}:

$$E_{n_2} = 1/2\,(R^2 - a^2) = 0{,}80\,E_{n_1} - 0{,}90\,E^*_{Be^9} \quad \text{(MeV)}$$

Unter Zugrundelegung der in Figur 6 angegebenen Niveaus von Be^9 und bei einer Neutronenenergie E_{n_1} von 3,7 MeV ergeben sich die in Tabelle 1 aufgeführten Werte.

Tabelle 1

Energie des unter $\varphi = 90°$ vom angeregten Compoundkern Be^{10} emittierten Neutrons n_2, wobei Be^9 mit der Anregungsenergie $E^*_{Be^9}$ zurückbleibt.

$E^*_{Be^9}$	$E_{n_2}(\varphi = 90°)$
0 (el. Streuung)	2,96 MeV
1,50 MeV	1,61 MeV
1,80 MeV	1,34 MeV
2,43 MeV	0,77 MeV

Wie bereits erwähnt wurde, kann aus dem angeregten Kernverband Be^{9*} ein Neutron emittiert werden, wenn die Anregungsenergie über dem Grundzustand von Be^8 liegt. Die Verhältnisse sind nun hier insofern etwas komplizierter, als der Kern Be^{9*} sich nicht in Ruhe befindet. Energie und Richtung des Be^{9*}-Kernes sind abhängig von der Richtung des vom Be^{10} emittierten Neutrons n_2.

Die Anwendung von Energie- und Impulssatz auf die Reaktion: $Be^{9*} = Be^8 + n_3$ liefert jedoch auch hier die Aussage, dass die Impulsspitzen von $\vec{P}_{n_3}$ auf einem Kreis mit dem Radius R^* liegen, dessen Zentrum gegen das Reaktionszentrum um die Strecke a^* verschoben ist. Die Durchrechnung liefert folgende Relationen:

$$R^* = 4/3\,\{E^*_{Be^9} - (E_{Be^8})_0\}^{1/2} \qquad (\text{MeV})^{1/2}$$

$$a^* = 1/9\,|\,\vec{P}_{Be^{9*}}\,| \qquad (\text{MeV})^{1/2}$$

Dabei bedeutet $(E_{Be^8})_0 = 1{,}666$ MeV die Energie des Grundzustandes von Be^8 über dem Grundzustand von Be^9, $E^*_{Be^9}$ die Anregungsenergie von Be^9 und $\vec{P}_{Be^{9*}}$ den Impuls des angeregten Be^9-Kernes. Das Impuls-Diagramm für die Reaktion $Be^9(n, 2n)\,Be^8$ zeigt Figur 7. Es ist hier zu beachten, dass prinzipiell jeder angeregte Be^{9*}-Kern beim Zerfall das Neutron in die Messrichtung ($\varphi = 90°$ gegen $\vec{P}_{n_1}$) emittieren kann. Man muss

demnach für das Energiespektrum den gesamten «Impuls-Igel» berücksichtigen, was am einfachsten graphisch erfolgt. Es lässt sich nun zeigen, dass der geometrische Ort der Zentren der Kreise mit dem Radius R^* wieder ein Kreis ist. Es gilt also für die Zentren die Relation:

$$(x - a_s)^2 + y^2 = R_s^2$$

wobei man erhält:

$$a_s = 2\,a \qquad R_s = 8/9\,R$$

Dadurch wird die graphische Auswertung erheblich erleichtert. Figur 8 zeigt das vollständige Impuls-Diagramm für das Niveau $E^*_{Be^9} = 2{,}43$ MeV.

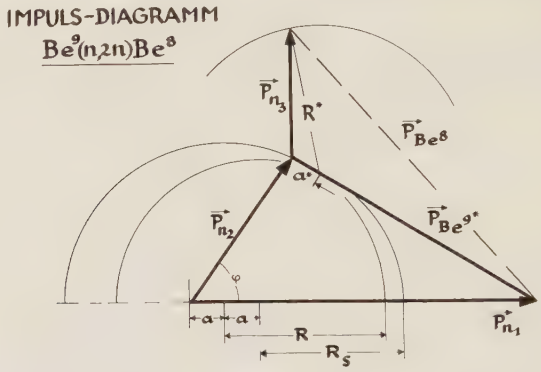


Fig. 7.

Impuls-Diagramm der Kernreaktion $Be^9(n, 2n)Be^8$. $\vec{P}_{n_1}$ ist der Impuls des einfallenden Neutrons n_1. Bei Vorgabe des Emissionswinkels φ ist der Impuls $\vec{P}_{n_2}$ durch die Grössen R und a und damit auch der Impuls des Be^{9*}-Kerns festgelegt. Beachtet man nun, dass die Messrichtung $\varphi = 90°$ der Richtung entspricht, die senkrecht steht auf dem Impuls $\vec{P}_{n_1}$, so lässt sich der Impuls und damit die Energie des Neutrons n_3 aus den Grössen R^* und a^* bestimmen

Für den Zerfall aus dem Niveau $E^*_{Be^9} = 2{,}43$ MeV in den Grundzustand von Be^8 erhält man bei einer Neutronenenergie von $E_{n_1} = 3{,}7$ MeV für die oben definierten Grössen folgende Werte:

$$R = 1{,}28\ (\mathrm{MeV})^{1/2} \qquad R^* = 1{,}16\ (\mathrm{MeV})^{1/2}$$

$$a = 0{,}272\ (\mathrm{MeV})^{1/2} \qquad a^* = 1/9\ |\,\vec{P}_{Be^{9*}}\,|\ (\mathrm{MeV})^{1/2}$$

$$|\,\vec{P}_{n_1}\,| = 2{,}72\ (\mathrm{MeV})^{1/2} \qquad R_s = 1{,}14\ (\mathrm{MeV})^{1/2}$$

Daraus resultiert das in Figur 8 dargestellte Impuls-Diagramm. Die dort nach unten eingezeichneten Impulse entsprechen, nach oben umgeklappt, dem von der unteren Kreishälfte herrührenden Anteil. Die Zentren a^* der Kreise mit dem konstanten Radius R^* ergeben sich als

Schnittpunkt des Kreises R_s mit dem Impuls-Pfeil $\vec{P}_{Be^{9*}}$. Der Impuls des Neutrons n_3 ist dann durch den Schnittpunkt des Kreises R^* mit einer vom Reaktionszentrum aus senkrecht gegen $\vec{P}_{n_1}$ gezogenen Geraden bestimmt.

Die maximale Neutronen-Energie beim Zerfall aus dem Niveau $E^*_{Be^9} = 2{,}43$ MeV ergibt sich aus der graphischen Auswertung zu 0,82

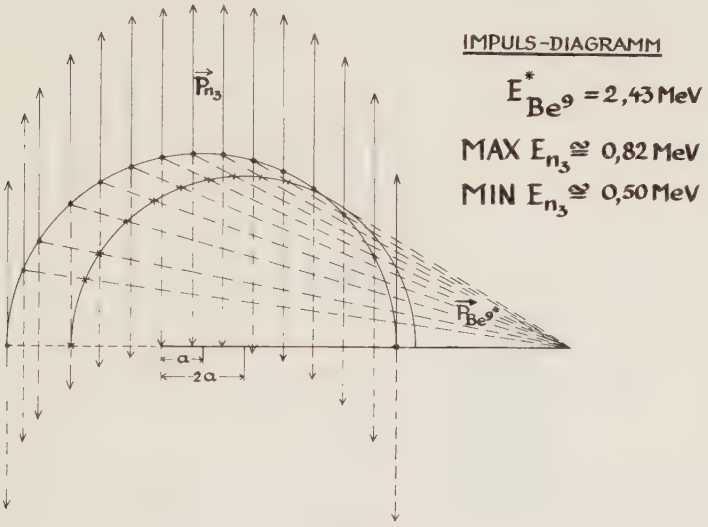


Fig. 8.

Impuls-Diagramm zur Bestimmung der Neutronen-Gruppe n_3 für das Niveau $E^*_{Be^9} = 2{,}43$ MeV. Es müssen alle vorkommenden Richtungen von $\vec{P}_{Be^{9*}}$ berücksichtigt werden, da ja jeder angeregte Kern das Neutron in die Messrichtung $\varphi = 90°$ emittieren kann. Daraus resultiert eine gewisse Verschmierung der Energie-Gruppe.

MeV, die minimale zu 0,50 MeV. Eine analoge Auswertung des Niveaus $E^*_{Be^9} = 3{,}10$ MeV liefert:

$$\text{Max. } E_{n_3} = 1{,}39 \text{ MeV}$$

$$\text{Min. } E_{n_3} = 1{,}15 \text{ MeV}.$$

Um beim Auswerten der Energie-Spektren bequemer arbeiten zu können, wurde das Energie-Intervall:

$$500 \text{ keV} \leqslant E_n \leqslant 5 \text{ MeV}$$

in 45 Intervalle von je 100 keV Breite eingeteilt. Das Energie-Intervall 1 entspricht Neutronenenergien von 500 bis 600 keV, das Energie-Inter-

vall 2 Neutronenenergien von 600 bis 700 keV usw. Die Ergebnisse der Impuls-Diagramm-Auswertungen sind in der nachstehenden Tabelle zusammengefasst.

Tabelle 2

Energien der unter $\varphi = 90°$ gegen die Einfallsrichtung der Neutronen n_1 emittierten Reaktionsneutronen des Be^9, berechnet unter der Annahme zeitlich getrennter Emission.

Herkunft des Neutrons	Energie (E_n)	Nummer des Energie-Intervalles
Zerfall von Be^{10*} in das Niveau:		
$E^* = 0$ (el. Streuung)	$E_{n_2} = 2{,}96$ MeV	25
$E^* = 1{,}50$ MeV.	$E_{n_2} = 1{,}61$ MeV	12
$E^* = 1{,}80$ MeV.	$E_{n_2} = 1{,}34$ MeV	9
$E^* = 2{,}43$ MeV.	$E_{n_2} = 0{,}77$ MeV	3
Zerfall von Be^{9*} aus dem Niveau:		
$E^* = 3{,}10$ MeV.	$1{,}15 \leqslant E_{n_3} \leqslant 1{,}39$ MeV	7, 8 und 9
$E^* = 2{,}43$ MeV.	$0{,}50 \leqslant E_{n_3} \leqslant 0{,}82$ MeV	1, 2, 3 und 4

4. Bestrahlung und Auswertung der Photoplatten

4.1. *Bestrahlung*

Ein kleiner Zylinder aus Beryllium ($\varnothing = 2{,}20$ cm, Länge $= 4{,}30$ cm) befindet sich in einem Abstand $r = 66$ cm lotrecht unter dem rotierenden Target. Dies entspricht einem Winkel von $\Theta = 30°$ gegen die Vorwärtsrichtung der Deuteronen im Laborsystem. Die Neutronenenergie in dieser Richtung beträgt $E_{n_1} = 3{,}7$ MeV (für $E_d = 800$ keV).

In dem Kanal einer Paraffin-Abschirmung (siehe Fig. 9) liegen zwei Ilford-C_2-Photoplatten (400 μ dick, $1 \times 2''$). Reaktionsneutronen vom Be^9, die unter $\varphi = 90°$ gegen die Neutroneneinfallsrichtung emittiert werden, erzeugen in den Platten Rückstossprotonen. Die Bestrahlungszeit betrug etwa 11 h. Da bei diesem Experiment mit starkem Untergrund zu rechnen ist, wurde auch dieser ohne Be^9-Zylinder in einer weiteren Bestrahlung von $7^1/_4$ h aufgenommen.

4.2. *Ausmessen der in den Platten erzeugten Rückstossprotonen*

Die Messung erfolgte mit einem Wild-Mikroskop (1020fache Vergrösserung, Öl-Immersions-Optik). Zur Ermittlung der Energie des Neutrons aus der Spur des von ihm erzeugten Rückstoss-Protons benötigt man die Länge der Protonenspur und den Streuwinkel α.

Die Länge der Spur wurde mit einem geeichten Okular-Mikrometer bestimmt und liefert auf Grund der Reichweite-Energie-Beziehung für Pro-

tonen in Ilford-C_2-Platten[3]) die Protonenenergie E_p. Der Streuwinkel α ergibt sich durch Parallelstellung einer Okular-Skala zur Protonenspur. Der dazu erforderliche Drehwinkel in Bezug auf die Einfallsrichtung des Neutrons kann dann an einer Kreis-Skala abgelesen werden, die am Tubus des Mikroskops angebracht ist. Für eine ebene Spur (ohne Tiefgang) gilt dann die Relation:

$$E_n = E_p(\cos^2 \alpha)^{-1}$$

Bei tiefgehenden Spuren werden die Rechnungen etwas umständlich, da weder die im Mikroskop sichtbare Länge noch der Streuwinkel mit der wahren Spurenlänge und mit dem wahren Streuwinkel identisch sind. Es

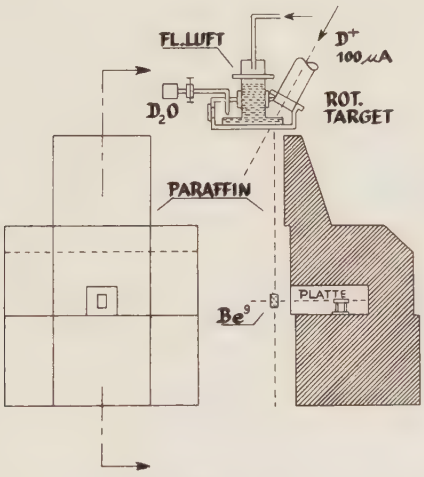


Fig. 9.

Bestrahlungs-Anordnung zur Aufnahme des Spektrums der vom Be^9-Zylinder unter $\varphi = 90°$ emittierten Reaktions-Neutronen.

wurden deshalb im wesentlichen Protonen-Rückstösse ohne Tiefgang ausgewertet. Nur etwa 3% der insgesamt gemessenen Spuren erforderten eine Neigungs-Korrektur. Der hierzu benötigte Schrumpfungsfaktor wurde durch Ausmessen von zufällig in der Emulsion vorhandenen Thorium-Sternen ermittelt. Die untere Grenze der noch ausmessbaren Spurenlänge liegt bei 5–6 μ. Das bedeutet eine Energie-Diskriminierung von 500 keV im Rückstoss-Spektrum. Die Auswahl der Spuren in bezug auf den Streuwinkel unterlag keiner Einschränkung.

Zunächst wurden 2000 Protonenspuren der Platten ausgemessen, die neben dem Untergrund auch Reaktionsneutronen vom Be^9 enthielten. Diese Platten seien im folgenden als $(n, 2n)$-Platten bezeichnet. Hierbei zeigte sich immer wieder eine charakteristische Dreier-Struktur im Energiegebiet zwischen 500 keV und 1,8 MeV. Figur 10 zeigt das Spektrum von 2000 Protonen-Rückstössen.

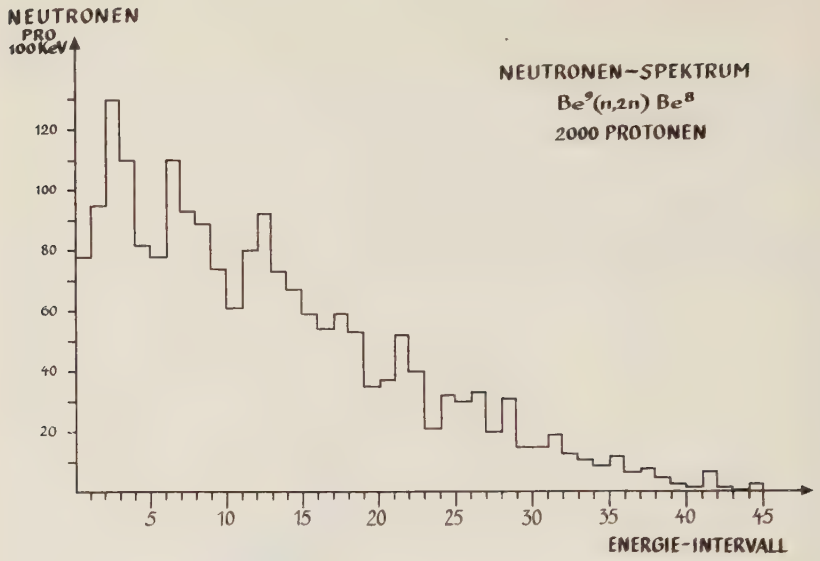


Fig. 10.

Rückstoss-Spektrum der $(n, 2n)$-Platten. Die Darstellung zeigt die relative Häufigkeit der Neutronenenergie bei einer Intervall-Breite von 100 keV

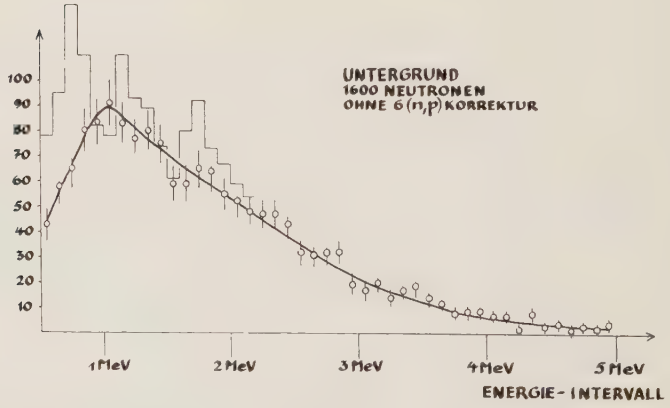


Fig. 11.

Rückstoss-Spektrum des Untergrundes. Die bei den Messpunkten angegebenen Strecken entsprechen den mittleren statistischen Fehlern. Zum Vergleich sind die ersten 17 Energie-Intervalle des $(n, 2n)$-Spektrums eingezeichnet. Die oben erwähnte Dreier-Struktur tritt hier besonders deutlich hervor.

Das Rückstoss-Spektrum des Untergrundes (es kamen 1600 Protonenspuren zur Auswertung) erwies sich innerhalb der Statistik als stetige Funktion der Energie ohne irgendwelche ausgezeichneten Gruppen. Diese Platte, die nur den Untergrund enthält, soll im folgenden mit U-Platte bezeichnet werden. Figur 11 zeigt das Rückstoss-Spektrum des Untergrundes.

Die in den Figuren 10 und 11 dargestellten Rückstoss-Spektren entsprechen nun noch nicht genau der Struktur der eingestrahlten Neutronenspektren, da der $\sigma(n, p)$-Querschnitt in dem betrachteten Energie-Intervall (500 keV bis 5 MeV) nicht konstant ist. Die dadurch erforderliche Korrektur – im folgenden auch mit $\sigma(n, p)$-Korrektur bezeichnet – wird jedoch erst beim Differenz-Spektrum berücksichtigt. Es ist an dieser Stelle wichtig zu betonen, dass es sich beim Untergrund-Spektrum, sowie beim Untergrund-Anteil der $(n,2n)$-Platten, nicht um ein wirklich vorhandenes Neutronen-Spektrum handelt. Man muss eher von einem fiktiven Untergrund-Spektrum in bezug auf die Richtung Be^9-Zylinder $\rightarrow$ Photoplatte sprechen. Es ist dies jedoch insofern ohne Belang, als bei der Differenzbildung der beiden Spektren dieses fiktive Spektrum eliminiert wird.

4.3. *Bestimmung des vom Be^9 stammenden Anteils im Spektrum der $(n,2n)$-Platten*

Zur Eliminierung des Untergrundes aus dem Spektrum der $(n, 2n)$-Platten ist nicht nur die Kenntnis der Struktur des Untergrundes erforderlich, sondern auch dessen absoluter Betrag.

Dieser kann nun durch Messung der in den Platten vorhandenen Spuren pro Gesichtsfeld des Mikroskops ermittelt werden. Bezeichnet man mit U die mittlere Anzahl von Protonen-Spuren pro Gesichtsfeld auf der Untergrundplatte, mit I die entsprechende Anzahl auf der $(n,2n)$-Platte und mit $\beta = S_1/S_2$ das Verhältnis der integralen Monitor-Stosszahlen beim Bestrahlen der $(n,2n)$-Platte (S_1) und beim Bestrahlen der U-Platte (S_2), so ergibt sich für den Untergrund U' auf der $(n,2n)$-Platte ein Wert von: $U' = \beta \cdot U$ (Untergrund-Spuren pro Gesichtsfeld). Auf die Spurenzahl I der $(n,2n)$-Platte kommt somit ein Untergrund von U'. Auf die beliebige Spurenzahl ν somit ein Untergrund U_ν' von:

$$U_\nu' = \nu\,(S_1/S_2)\,(U/I) = \nu V \quad \text{mit} \quad V \equiv (S_1/S_2)\,(U/I)$$

Zur Bestimmung der mittleren Anzahl von Spuren pro Gesichtsfeld des Mikroskops wurden sowohl auf der U-Platte als auch auf der $(n,2n)$-Platte 2×1080 Gesichtsfelder ausgezählt. Die Ergebnisse sind in der nachfolgenden Tabelle 3 aufgeführt.

Die integralen Monitor-Stosszahlen betragen:

$$S_1 = 111551 \pm 1\%, \; S_2 = 93892 \pm 1\% .$$

Bei der Bestimmung von I wurden nochmals 600 Protonen-Rückstösse für das $(n,2n)$-Spektrum ausgemessen, so dass nun insgesamt 2600 Rückstösse für das $(n,2n)$-Spektrum zur Verfügung standen.

Tabelle 3

Mittlere Protonen-Spurenzahl pro Gesichtsfeld auf der U-Platte und auf der $(n,2n)$-Platte. Die Auszählung wurde in zwei unabhängigen Messungen von je 1080 Feldern durchgeführt, um die Schwankungen der Messwerte feststellen zu können. Wie man erkennt, liegen diese innerhalb des statistischen Fehlers.

Platte	Anzahl der Gesichtsfelder	Anzahl der Protonenspuren	Mittlere Spurenzahl pro Gesichtsfeld
Untergrundplatte	1080	2563	
	1080	2549	
	2160	5112	$U = 2{,}367 \pm 1{,}4\%$
$(n,2n)$-Platte	1080	3761	
	1080	3757	
	2160	7518	$I = 3{,}480 \pm 1{,}2\%$

Mit diesen Daten ergibt sich nun für V:

$$V = 0{,}81 \pm 0{,}02$$

Auf die Spurenzahl 2600 des $(n,2n)$-Spektrums kommt somit ein Untergrund U_ν' von:

$$U_\nu' \cong 2600 \times 0{,}81 \cong 2100$$

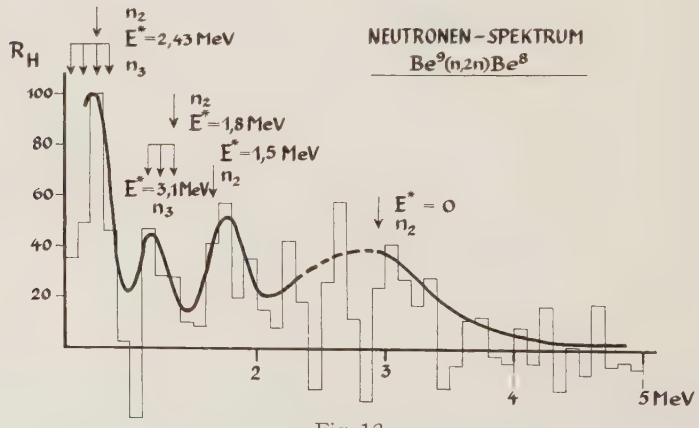


Fig. 12.

Die Darstellung zeigt die normierten relativen Häufigkeiten R_H im Differenz-Spektrum. Normierung im Energie-Intervall 3: $R_H(3) = 100$, $R_H^*(3) = 18{,}1$.

Das Untergrund-Spektrum wurde nun auf Grund obiger Daten an das $(n,2n)$-Spektrum angepasst und die Differenz auf den (n,p)-Querschnitt korrigiert. Bezeichnet man die bei der Differenzbildung entstehenden relativen Häufigkeiten in den einzelnen Energie-Intervallen mit $R(E_n)$, so besteht die $\sigma(n,p)$-Korrektur in einer Division dieser Häufigkeiten durch den Mittelwert des (n,p)-Querschnitts (in *barn*)[4]) in den entsprechenden Energieintervallen. Diese auf $\sigma(n,p)$ korrigierten Häufigkeiten seien im folgenden mit R^* bezeichnet. Figur 12 zeigt das Differenz-Spektrum, das im Energie-Intervall 3 auf den Wert 100 normiert wurde.

5. Ergebnis.

In der Figur 12 sind nun diejenigen Energie-Intervalle durch Pfeile gekennzeichnet, in denen man auf Grund der angeregten Zustände von Be^9 die Neutronen des (n,n)- und des $(n,2n)$-Prozesses erwartet. Das in Figur 6 angegebene Niveauschema zeigt, dass Übergänge vom angeregten Compound-Kern Be^{10} in den Grundzustand von Be^9, sowie in den ersten angeregten Zustand $E^*_{Be^9} - 1{,}50$ MeV nicht zu einer $(n,2n)$-Reaktion Anlass geben können: Man erkennt, dass ein Energie-Intervall existiert, welches die Neutronen aus (n,n)-Reaktionen von den Neutronen aus (n,2n)-Reaktionen trennt. Um dies einzusehen, betrachte man die auf Seite 95 angegebene Relation für die Energie E_{n_2} des vom Zwischenkern Be^{10} emittierten Neutrons n_2:

$$E_{n_2} = 0{,}80\, E_{n_1} - 0{,}90\, E^*_{Be^9}\,.$$

Setzt man für $E^*_{Be^9}$ den Wert 1,666 MeV ein, das heisst gerade die Energie des Grundzustandes von Be^8 über dem Grundzustand von Be^9, so stellt die Energie $E_{n_2} = 1{,}46$ MeV die obere Grenze dar, bei der noch ein $(n,2n)$-Prozess möglich ist. Dieser Neutronen-Energie entspricht das Energieintervall 10, mit anderen Worten, die Neutronen aus der $(n,2n)$-Reaktion an Be^9 liegen in der Figur 12 in den Intervallen 1–10.

Anmerkung. Es entstehen auch Neutronen mit Energien kleiner als 500 keV (das heisst unterhalb des Energieintervalls 1), die jedoch wegen der experimentell bedingten Energie-Diskriminierung nicht erfasst werden.

Im Differenz-Spektrum sind im Energiegebiet von 500 keV bis 1,5 MeV eindeutig zwei Gruppen zu erkennen, die sehr gut mit den berechneten Werten übereinstimmen. Das erste Maximum im Energie-Intervall 3 entspricht dem Ablauf der $(n, 2n)$-Reaktion über das Niveau $E^*_{Be^9} = 2{,}43$ MeV, der offenbar am häufigsten auftritt. Im Energie-Intervall 7 und 8 liegt das zweite Maximum, das im wesentlichen durch Übergänge aus dem angeregten Zustand von Be^9 mit der Anregungsenergie $E^*_{Be^9} = 3{,}10$ MeV in den Grundzustand von Be^8 erzeugt wird. Der Übergang vom

Compound-Kern Be^{10} in das Niveau $E^*_{Be^8} - 1{,}80$ MeV, dessen Neutron (n_2) im Intervall 9 zu erwarten wäre, ist nicht sehr ausgeprägt.

Die über dem Intervall 10 liegenden Gruppen entsprechen, wie bereits ausgeführt wurde, Neutronen aus der elastischen und inelastischen Streuung, wobei die Anregungsenergie von Be^9 unterhalb $E^* = 1{,}666$ MeV liegt. Dem in den Intervallen 12 und 13 auftretenden Maximum kann der Übergang vom Compound-Kern Be^{10} in das Niveau $E^*_{Be^8} - 1{,}50$ MeV zugeordnet werden.

Die oben geschilderte und in Figur 12 dargestellte gute Koinzidenz zwischen dem experimentellen Ergebnis und den Voraussagungen auf Grund der Annahme zeitlich getrennter Emission der beiden Neutronen, berechtigt zu der Aussage, dass die $(n,2n)$-Reaktion an Be^9 bei einer Neutronenenergie von 3,7 MeV über die angeregten Zustände von Be^9 verläuft.

6. Berechnung des differentiellen Querschnitts σ_{diff} $Be^9(n, 2n)$ Be^8 für $\varphi = 90°$ im Laborsystem und bei einer Neutronenenergie von 3,7 MeV

6.1. *Zusammenhang zwischen dem differentiellen Querschnitt und den experimentell direkt bestimmbaren Grössen*

Die in den Be^9-Zylinder einfallende Anzahl von Neutronen sei n_0. Dann erhält man für $\varphi = 90°$ in den Raumwinkel Ω_Z die Neutronen:

a) Durch (n,n)-Reaktionen

$$z_1 = n_0 \cdot \varrho_0 \, l_0 \, \Omega_Z \cdot \sigma_{diff}(n, n) \, .$$

Mit $\Phi = n_0 \cdot \varrho_0 \, l_0 \, \Omega_Z$ kann man schreiben:

$$z_1 = \Phi \cdot \sigma_{diff}(n, n) \, .$$

Dabei bedeuten ϱ_0 die Zahl der Be^9-Kerne/cm³ und l_0 die Länge des Be^9-Zylinders.

b) Durch $(n,2n)$-Reaktionen

$$z_2 = 2 \, \Phi \cdot \sigma_{diff} \, (n, 2 \, n) \, .$$

Durch diesen Ansatz ist der differentielle Querschnitt der $(n,2n)$-Reaktion in konventioneller Weise definiert, das heisst die Integration des differentiellen Querschnittes über den ganzen Raum liefert den totalen Querschnitt.

Experimentell bestimmt man die Anzahl der Protonenrückstösse in einer Emulsionszelle von der Länge $l_Z = 0{,}10$ cm und der Breite $b = 0{,}10$ cm. Es sei nun $\gamma = z_1/z_2$ das Verhältnis der aus (n,n)-Reaktionen stammenden Neutronen zu den aus $(n,2n)$-Reaktionen herrührenden.

Dann erhält man für die insgesamt in die Messzelle einfallende Neutronenzahl $z = z_1 + z_2$ die Relation:

$$z = 2\,(1+\gamma)\;\Phi \cdot \sigma_{\text{diff}}\,(n, 2n)\,.$$

Bezeichnet man mit $\bar{\varepsilon}_P$ die mittlere Wahrscheinlichkeit für eine (n,p)-Streuung innerhalb der Emulsionszelle, so ergibt sich für die durch z erzeugte Anzahl von Protonenrückstössen P_Z:

$$P_Z = z \cdot \bar{\varepsilon}_P$$

Für den differentiellen Querschnitt erhält man damit die Beziehung

$$\sigma_{\text{diff}}\,(n, 2n) = P_Z \{2 \cdot \bar{\varepsilon}_P\,(1+\gamma)\;\Phi\}^{-1}$$

6.2. *Bestimmung von n_0 aus dem differentiellen Querschnitt und der Neutronen-Ausbeute der d-d-Reaktion*

Bei der Aufnahme des Neutronenspektrums des rotierenden Targets (Fig. 3) wurde, wie bereits erwähnt, eine dicke D_2O-Eisschicht mit 90 μA Deuteronenstrom bestrahlt. Die Neutronen-Ausbeute blieb für die Dauer von 90 min im wesentlichen konstant. Diese Tatsache gestattet, den Neutronenfluss auf Grund der Monitor-Stosszahlen und der totalen Neutronen-Ausbeute A der d-d-Reaktion zu eichen.

Bezeichnet man mit:

S_3	$= 4804$	die maximale Monitorstosszahl pro 15 min (Fig. 4);
A	$= 4{,}2 \times 10^7$	Neutronen/μClb, die totale Ausbeute[5]) eines dicken D_2O-Eistargets bei einer Deuteronenenergie von 800 keV,
Ω_1	$= 9 \times 10^{-4}$	sterad den Raumwinkel des Be^9-Zylinders bezüglich des Quellpunktes der Neutronen,
σ_1	$= 12{,}8$	mb/sterad den differentiellen Querschnitt der d-d-Reaktion[6]) für $\Theta = 30°$ (Laborsystem) bei einer Deuteronenenergie von 800 keV,
σ_2	$= 86$	mb den totalen Querschnitt der d-d-Reaktion bei einer Deuteronenenergie von 800 keV[6]),
i	$= 90$	μA den mittleren Deuteronenstrom,

so erhält man für n_0

$$n_0 = 9 \times 10^2 \cdot i \cdot A\,\Omega_1 \frac{\sigma_1 S_1}{\sigma_2 S_3} \exp(-\lambda_0)$$

Der Term $\exp(-\lambda_0)$, mit

$$\lambda_0 \equiv \sum_\nu \bar{\sigma}_{t_\nu} \cdot \varrho_\nu \cdot l_\nu$$

berücksichtigt die Intensitätsabnahme des Neutronenflusses infolge Ma-

terie zwischen Quellpunkt der Neutronen und Be^9-Zylinder. Die Berechnung dieser Summe geht aus Tabelle 4 hervor.

Tabelle 4

Daten zur Berechnung der Summe λ_0. In der ersten Spalte sind die verschiedenen Materieschichten aufgeführt, die sich zwischen dem Quellpunkt der Neutronen und dem Be^9-Körper befinden. Der in Spalte 3 angegebene Querschnitt ist ein Mittelwert über den Energiebereich des eingestrahlten *d-d*-Neutronen-Spektrums.

Materie	Kerne/cm³	$\bar{\sigma}_{t_\nu}$(*barn*)[4]	l_ν(cm)	$\bar{\sigma}_{t_\nu} \cdot \varrho_\nu \cdot l_\nu$
Eisschicht D_2O. . . .	6×10^{22} (D)	2,0	0,04	0,0048
	3×10^{22} (O)	3,0	0,04	0,0036
Rotierende Cu-Scheibe	$8{,}4 \times 10^{22}$	3,0	0,4	0,1008
Fl. Luft 79% N_2 . . .	$3{,}1 \times 10^{22}$	2,0	0,8	0,0496
21% O_2 . . .	$0{,}72 \times 10^{22}$	3,0	0,8	0,0173
0,92 g/cm³				
Bodenplatte des rot. Target. Messing				
8,45 g/cm³ 63% Cu . .	5×10^{22}	3,0	0,2	0,0300
37% Zn . .	$2{,}9 \times 10^{22}$	3,0	0,2	0,0174
Luft $p = 760$ Torr . .	$4{,}25 \times 10^{19}$ (N)	2,0	63	0,0054
	$1{,}13 \times 10^{19}$ (O)	3,0	63	0,0021

Mit den obigen Daten erhält man nun für n_0

$$n_0 = 8{,}4 \times 10^9 \text{ Neutronen.}$$

Fehlerabschätzung: Der Deuteronenstrom $i = 90\ \mu$A schwankte während der Bestrahlung um etwa $2\ \mu$A, was einem Fehler von 2% entspricht. Der Raumwinkel Ω_1 und die Monitor-Stosszahlen S_1, S_3 sind auf 1% genau. Die Summe λ_0 dürfte infolge Mittelung der totalen Querschnitte einen mittleren Fehler von etwa 6% aufweisen. Damit ergibt sich für den relativen Fehler von n_0:

$$\frac{\triangle n_0}{n_0} \simeq 7\%$$

Resultat: $n_0 = (8{,}4 \pm 0{,}6) \times 10^9$ Neutronen.

6.3. *Bestimmung von n_0 mit einer Photoplatte*

Eine zweite Möglichkeit zur Ermittlung der in den Be^9-Zylinder einfallenden Neutronenzahl besteht in der Auszählung von Rückstoss-Spuren in der Photoplatte, die zur Bestimmung des *d-d*-Neutronen-Spektrums des rotierenden Targets bestrahlt wurde. Man betrachte eine

Emulsionsschicht von der Länge $l_A = x$ und dem rechteckigen Querschnitt f_A (Fig. 13). Die auf f_A treffende Neutronenzahl sei N_0. Durch Streuung an den Atomkernen der Emulsion und durch Kernreaktionen wird die Intensität des Neutronenflusses mit wachsender Emulsionslänge abnehmen.

Die Intensität N_e nach dem Wege l_A ergibt sich zu

$$N_e = N_0 \, (1 + l_A/r_0)^{-2} \exp \left(- \sum_\nu \bar{\sigma}_{t_\nu} \times \varrho_{K_\nu} \times l_A\right)$$

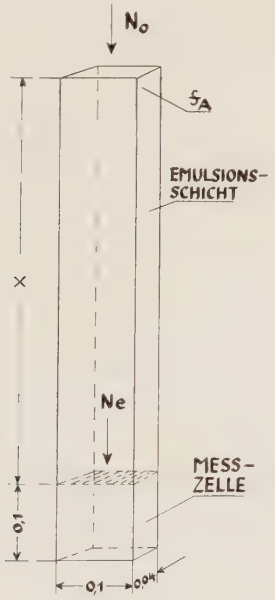


Fig. 13.

Darstellung eines Streifens der photographischen Emulsion zur Berechnung der Intensitätsabnahme der auf f_A auftreffenden Neutronen. Die Fläche f_A entspricht einem Ausschnitt aus der Platten-Stirnseite ($x = 0$). In die Messzelle (1 mm²) einfallende Neutronen N_e geben Anlass zu Rückstoss-Spuren von Protonen, deren Anzahl durch Auszählen ermittelt wird.

Dabei berücksichtigt der Term $(1 + l_A/r_0)^{-2}$ die zunehmende Entfernung vom Quellpunkt der Neutronen. $r_0 = 65$ cm bedeutet den Abstand zwischen Neutronenquelle und Platten-Stirnseite. Die Berechnung der Summe

$$\alpha_0 \equiv \sum_\nu \bar{\sigma}_{t_\nu} \times \varrho_{K_\nu}$$

erfordert die Kenntnis der Zusammensetzung einer Ilford-C_2-Emulsion. Ihre Berechnung geht aus Tabelle 5 hervor.

Bei der Berechnung der in der Messzelle zu erwartenden Spurenzahl ist nun zu berücksichtigen, dass man kein streng monochromatisches

Spektrum einstrahlt, wodurch die Energieabhängigkeit des (n,p)-Querschnitts in die Rechnung eingeht.

Es sei $N(E_n)$ die relative Häufigkeit im Neutronen-Spektrum des rot. Target (Fig. 3) bei einer Intervallbreite von 100 keV. Die absolute Neutronen-Intensität $n(E)$ wird diesen Häufigkeiten proportional sein:

$$n(E) = C\, N(E_n)$$

Diese $n(E)$-Neutronen erzeugen in einer Emulsionsschicht von der Länge $l_Z = 0{,}10$ cm Protonen-Rückstösse p_ν:

$$p_\nu = n(E)\,\{1 - \exp\,(-\sigma\,(n,p)\cdot\varrho_P\cdot l_Z)\}$$

Dies lässt sich wegen $\sigma(n,p)\cdot\varrho_P\cdot l_Z \ll 1$ entwickeln und liefert:

$$p_\nu = C\, N(E_n)\cdot\sigma(n,p)\cdot\varrho_P\cdot l_Z$$

Beachtet man nun, dass $N(E_n)\cdot\sigma(n,p) \equiv \mathrm{r}(E_n)$ identisch ist mit der Energieverteilung im Protonen-Rückstoss-Spektrum der Neutronen des rot. Target [$N(E_n)$ ergibt sich ja, wie bereits erwähnt, durch Division der relativen Häufigkeiten im Rückstoss-Spektrum durch den entsprechenden Wert des (n,p)-Querschnitts], so kann man schreiben:

$$p_\nu = C\cdot r(E_n)\,\varrho_P\cdot l_Z$$

wobei $\varrho_P = 3{,}2 \times 10^{22} \pm 2{,}5\%$ die Protonendichte der C_2-Emulsion bedeutet (siehe Tabelle 5).

Tabelle 5

Berechnung der Summe $\alpha_0 \equiv \sum_\nu \bar{\sigma}_{t_\nu}\cdot\varrho_{K_\nu}$ für eine Ilford-C_2-Emulsion. Die in Spalte 2 angegebenen Werte für die Dichte der einzelnen Emulsionskomponenten entsprechen einer Information von Ilford Ltd., London, für Ilford-C_2-Emulsionen, im Gleichgewicht mit Luft von 58% relativer Feuchtigkeit bei Normaltemperatur.

Element	Dichte (g/cm³)	Kerne/cm³	$\bar{\sigma}_{t_\nu}$(barn)[4]	$\bar{\sigma}_{t_\nu}\cdot\varrho_{K_\nu}\cdot 10^2$
Ag	1,817 ± 0,029	$1{,}01 \times 10^{22}$	4,0	4,04
Br	1,324 ± 0,020	$0{,}99 \times 10^{22}$	3,8	3,76
J	0,052	$0{,}02 \times 10^{22}$	4,7	0,09
C	0,277 ± 0,006	$1{,}38 \times 10^{22}$	2,0	2,76
H	0,0534 ± 0,0012	$3{,}20 \times 10^{22}$	2,1	6,72
O	0,249 ± 0,005	$0{,}93 \times 10^{22}$	3,0	2,79
N	0,074 ± 0,002	$0{,}32 \times 10^{22}$	2,0	0,64
S	0,0072 ± 0,0002	$0{,}013 \times 10^{22}$	3,0	0,04

Durch Summation über das ganze Spektrum ergibt sich für die in der Messzelle zu erwartende Spurenzahl P_Z:

$$P_Z = \sum_{\nu} p_\nu = C^* \sum r(E)$$

wobei $C^* = C \cdot \varrho_p \cdot l_Z$ gesetzt wurde. Die hier auftretende Summe $\Sigma r(E)$ ist nun gerade die im Rückstoss-Spektrum ausgewertete Spurenzahl $S_P = 1000$, so dass wir für die zunächst unbestimmte Konstante $C^* = P_Z(S_P)^{-1}$ erhalten. Setzt man den Wert von $\sigma(n, p)$ in *barn*, die Protonendichte ϱ_p der Emulsion in Einheiten von 10^{22} ein, so ergibt sich $n(E) = P_Z \cdot \varrho_p^{-1} N(E_n)$, und durch Summation die insgesamt in die Messzelle einfallende Neutronenzahl:

$$N_e = \sum n(E) = P_Z \cdot \varrho_p^{-1} \cdot \sum N(E_n)$$

Geht man mit diesem N_e in die oben angegebene Relation für die Intensitätsabnahme des Neutronenflusses ein, so erhält man für die in der Messzelle zu erwartende Spurenzahl $P_Z(x)$ als Funktion des Abstandes $l_A = x$ von der Platten-Stirnseite:

$$P_Z(x) = N_0 \cdot \varrho_p \left(\sum N(E_n)\right)^{-1} \cdot \left(1 + \frac{x}{r_0}\right)^{-2} \exp\left(-\alpha_0 x\right)$$

Für $x = 0$ (Platten-Stirnseite) ergibt sich die insgesamt auf die Fläche f_A treffende Neutronenzahl N_0 zu:

$$N_0 = P_Z(x = 0) \cdot \varrho_p^{-1} \cdot \sum N(E_n) .$$

Durch die Addition der in obiger Tabelle in Spalte 5 angegebenen Werte ergibt sich für die Summe: $\alpha_0 = 0{,}22$.

Die Summe $\Sigma N(E_n)$ resultiert aus dem Spektrum des rot. Target und liefert einen Wert von 470 $\pm$ 5% (Stat. Schwankung).

$P_Z(x)$ bedeutet die Spurenzahl pro Messzelle, das heisst pro mm². Das Gesichtsfeld im Mikroskop ist ein Kreis mit dem Radius $r = 52\,\mu$. Die Fläche des Gesichtsfeldes beträgt somit $f = 0{,}85 \times 10^{-2}$ mm² $\pm$ 1%.

Es sei nun $i_p(x)$ die Anzahl von Protonenspuren im Gesichtsfeld des Mikroskops als Funktion des Abstandes x von der Platten-Stirnseite. Setzt man die oben angegebenen Werte von r_0, α_0 ein und berücksichtigt noch die Beziehung $P_Z(x) = i_p(x)\, f^{-1}$ so ergibt sich:

$$i_p(x) = \text{const.} \left(1 + \frac{x}{65}\right)^2 \exp\left(-0{,}22\, x\right)$$

wobei

$$\text{const} = \varrho_p\, f \left(\sum N\,(E_n)\right)^{-1} N_0 = (5{,}8 \times 10^{-5})\, N_0 .$$

Es wurde nun $i_p(x)$ für 8 verschiedene Werte von x gemessen. Figur 14 zeigt die Spurenzahl pro Gesichtsfeld als Funktion des Abstandes x von

der Platten-Stirnseite. Die eingezeichnete Kurve konnte mit den Parametern const. = 107 und $\alpha_0 = 0{,}22$ gut an die Messpunkte angepasst werden, was mit dem berechneten Intensitätsabfall übereinstimmt.

Aus const. = 107 folgt für die auf die Stirnfläche f_A treffende Neutronenzahl N_0:

$$N_0 = 1{,}85 \times 10^6 \text{ Neutronen}$$

Umrechnung auf Be^9-Körper. Die oben angegebene Neutronenzahl N_0 fällt bei einem Abstand $r_0 = 65$ cm von der Neutronenquelle auf die Fläche $f_A = 4 \times 10^{-3}$ cm² der Platten-Stirnseite. Die integrale Monitor-Stosszahl beim Bestrahlen der Ilford-Platte zur Bestimmung des Spektrums des rot. Target betrug $S_4 = 28410$. Der Querschnitt des Be^9-Zylinders beträgt $q = 3{,}80$ cm². Für die bei einer integralen Monitor-Stosszahl von $S_1 = 111551$ in den Be-Zylinder einfallende Neutronenzahl n_0 erhält man dann:

$$n_0 = N_0 \frac{q}{f_A} \frac{S_1}{S_4} = 6{,}9 \times 10^9 \text{ Neutronen}$$

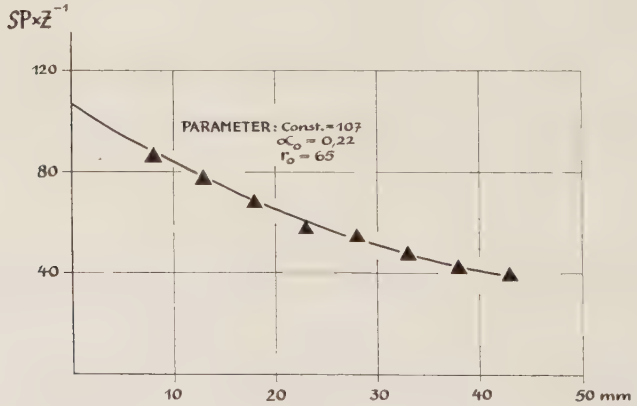


Fig. 14.

Die Darstellung zeigt die Spurenzahl als Funktion des Abstandes von der Plattenstirnseite. Insgesamt wurden für die 8 Messpunkte 25791 Spuren gezählt. Die mittlere statistische Schwankung der einzelnen Werte beträgt etwa 2%. An den Randstellen der Platte ist die Emulsion immer stark aufgeworfen, so dass die Messung der Spurenzahl in unmittelbarer Nähe der Stirnseite nicht möglich ist.

Fehlerabschätzung. Mit den oben angegebenen mittleren Fehlern der in die Rechnung eingehenden Grössen ergibt sich für N_0 ein mittlerer Fehler von 6%. Berücksichtigt man noch den bei der Umrechnung auf n_0 auftretenden Fehler, so erhält man:

$$n_0 = (6{,}9 \pm 0{,}5) \times 10^9 \text{ Neutronen}\,.$$

6.4. *Berechnung von* $\Phi = n_0 \cdot \varrho_0 \cdot l_0 \Omega_Z$

a) Für n_0 ergaben sich die in 6.2. und 6.3. berechneten Werte: $(8{,}4 \pm 0{,}6) \times 10^9$ und $(6{,}9 \pm 0{,}5) \times 10^9$ Neutronen. Beide Grössen haben denselben mittleren Fehler von etwa 7%. Zur Berechnung von Φ legen wir den Mittelwert der beiden Resultate zugrunde. $n_0 = (7{,}7 \pm 0{,}6) \times 10^9$ Neutronen.

b) Die Dichte von Be^9 wurde experimentell ermittelt und ergab sich zu $\varrho = 1{,}842$ g/cm³ und ist genauer als 1%. Daraus errechnet sich die Kerndichte zu $\varrho_0 = 1{,}23 \times 10^{23}$ Kerne/cm³.

c) Die Länge des Be^9-Körpers beträgt $l_0 = 4{,}30$ cm (genauer als 1%).

d) Ω_Z ist der mittlere Raumwinkel einer Emulsions-Messzelle bezüglich des Be^9-Zylinders. Bezeichnet man mit $r^* = 18{,}5$ cm die mittlere Distanz zwischen der Photoplatte und dem Be^9-Körper, mit $q^* = 4 \times 10^{-3}$ cm² den Querschnitt der Messzelle ($l_z = b_z = 0{,}10$ cm, Dicke der Emulsion = 400 μ), so erhält man für $\Omega_Z = q^*/r^{*2} = 1{,}17 \times 10^{-5}$ sterad. Dass bei der Berechnung dieses Raumwinkels gerade der mittlere Abstand r^* (entspricht der Plattenmitte) in Rechnung gesetzt wurde, lässt sich wie folgt begründen: Die Auszählung der Spuren auf der $(n,2n)$- und auf der Untergrund-Platte kann nicht auf eine bestimmte Stelle – das heisst auf ein bestimmtes r^* – eingeschränkt werden. Auf Grund der geringen Anzahl von Rückstoss-Spuren muss die Auszählung über die ganze Länge der Platte, also über 5 cm, erfolgen. Diese Art der Auswertung stellt nun eine Mittelung dar, deren Ergebnis der Spurenzahl in der Plattenmitte entspricht, also gerade der Stelle, die der Berechnung des mittleren Raumwinkels zugrunde liegt.

Für den mittleren Fehler von Ω_Z wird man etwa 10% annehmen müssen (dies entspricht einer Unsicherheit der mittleren Distanz r^* von 1 cm).

Mit den unter a), b), c) und d) angegebenen Werten erhält man für Φ:

$$\Phi = (4{,}8 \pm 0{,}6) \times 10^{28}\ \text{cm}^{-2}$$

6.5. *Bestimmung der mittleren Wahrscheinlichkeit einer* (n,p)*-Streuung innerhalb der Messzelle*

Die vom Be^9-Körper in die Messzelle der Emulsion einfallenden Neutronen z erzeugen Rückstoss-Protonen P_Z:

$$P_Z = z \cdot \bar{\sigma}\,(n,p) \cdot \varrho_p\, l_Z = z \cdot \bar{\varepsilon}_P \text{ mit } \bar{\varepsilon}_P \equiv \bar{\sigma}\,(n,p) \cdot \varrho_p \cdot l_Z$$

Der mittlere Streuquerschnitt $\bar{\sigma}(n,p)$ kann aus dem Spektrum der einfallenden Neutronen, das heisst aus dem Differenz-Spektrum (Fig. 12)

ermittelt werden. Bezeichnet man die relativen Häufigkeiten im Differenz-Spektrum mit R_H^*, so kann man schreiben:

$$\bar{\sigma}\,(n, \not{p}) = \frac{\sum R_H^* \sigma(E)}{\sum R_H^*}$$

Die hier auftretende Summe $\Sigma R_H^* \cdot \sigma(E)$ ist identisch mit der Summe über die relativen Häufigkeiten im Differenz-Spektrum bevor die $\sigma(n,\not{p})$-Korrektur ausgeführt wurde, und entspricht demnach der in diesem Spektrum vorhandenen Spurenzahl. Mit dem in 4.3. definierten Anpassungsfaktor V kann man deshalb schreiben:

$$\sum R_H^* \cdot \sigma\,(E) = 2600\,(1 - V)$$

Berücksichtigt man, dass bei der $\sigma(n,\not{p})$-Korrektur im Differenz-Spektrum die Querschnitte in der Einheit *barn* eingesetzt wurden, so ergibt sich für $\bar{\varepsilon}_P$:

$$\bar{\varepsilon}_P = 2600 \times 10^{-24}\, \varrho_{\not{p}} \cdot l_Z \frac{1 - V}{\sum R_H^*}$$

Anmerkung. Die relativen Häufigkeiten R_H^* entsprechen den Häufigkeiten im Differenz-Spektrum der Abbildung 12 vor der Normierung auf 100 im Energie-Intervall 3.

6.6. *Bestimmung der Spurenzahl P_Z von Rückstoss-Protonen innerhalb der Messzelle, die von Reaktionsneutronen des Be^9 erzeugt werden*

Bekannt ist zunächst die mittlere Spurenzahl I pro Gesichtsfeld f des Mikroskops auf der $(n, 2n)$-Platte (siehe Tabelle 3). Der Anteil $\not{p}_f$ von Protonen-Rückstössen, die von Neutronen des Be^9 erzeugt werden, ergibt sich mit dem Anpassungsfaktor V zu:

$$\not{p}_f = I\,(1 - V)$$

oder auf die Messzelle (1 mm²) bezogen:

$$P_Z = I\,(1 - V)\, f^{-1}$$

6.7. *Berechnung des Verhältnisses $P_Z/2\bar{\varepsilon}_P$*

Der differentielle Querschnitt $\sigma_{\text{diff}}(n, 2n)$ ist nun proportional dem Verhältnis:

$$\frac{P_Z}{2\bar{\varepsilon}_P} = \frac{10^{22}}{52} \frac{I \sum R_H^*}{f \cdot \varrho_p \cdot l_Z}$$

ΣR_H^* ergibt sich aus dem Differenz-Spektrum durch Addition der einzelnen Ordinaten vor der Normierung zu 134 ± 7. Mit diesen Daten erhält man für das Verhältnis:

$$\frac{P_Z}{2\,\bar{\varepsilon}_P} = (3{,}3 \pm 0{,}2) \times 10^3 \quad (6\% \text{ stat. Schwankung})$$

6.8. *Bestimmung von γ*

γ ist per definitionem das Intensitätsverhältnis der Neutronen aus (n,n)- und aus $(n,2n)$-Reaktionen. Dieses Verhältnis kann aus dem Differenz-Spektrum ermittelt werden. Man beachte hierzu die bereits erwähnte Tatsache, dass die Neutronen aus (n,n)-Reaktionen im Differenz-Spektrum alle über dem Energie-Intervall 10 liegen. Die Intensität der aus (n,n)-Reaktionen stammenden Neutronen wird demnach proportional sein der Summe $\Sigma(n,n)$ über die Häufigkeiten R_H^* oberhalb des Energie-Intervalls 10. Entsprechendes gilt für die aus $(n,2n)$-Reaktionen stammenden Neutronen. Bezeichnet man mit $\Sigma(n,2n)$ die Summe über die Häufigkeiten R_H^* in den Intervallen 1–10, so kann man schreiben:

$$\gamma \equiv z_1/z_2 = \frac{\Sigma\,(n,\,n)}{\Sigma\,(n,\,2n)}\,.$$

Aus dem Differenz-Spektrum ergeben sich durch Addition der relativen Häufigkeiten R_H^* die Summen:

$$\Sigma\,(n,\,n) = 76{,}5 \pm 7\% \text{ und } \Sigma\,(n,\,2\,n) = 57{,}5 \pm 6\%\,.$$

Die mittleren Fehler dieser beiden Werte sind die statistischen Schwankungen des Rückstoss-Spektrums. Damit erhält man nun für γ:

$$\gamma = 1{,}33 \pm 0{,}12\,.$$

6.9. *Berücksichtigung der Reaktionsneutronen von Be^9 mit kleineren Energien als 500 keV*

Wie in 5. bereits erwähnt wurde kann man auch Reaktions-Neutronen von Be^9 mit kleineren Energien als 500 keV erwarten. Diese sind jedoch auf Grund der geringen Spurenlängen der von ihnen erzeugten Rückstoss-Protonen zur Auswertung nicht geeignet. Beachtet man, dass einer Protonenenergie von 270 keV eine Reichweite von etwa $3\,\mu$ entspricht (in einer Ilford-C_2-Emulsion), so sieht man ein, dass bei diesen Energien die Protonenspuren überhaupt nicht mehr als solche identifiziert werden können. Man erkennt aus dem Niveauschema (Fig. 6), dass folgende Übergänge zur Emission von Neutronen kleiner Energie Anlass geben können:

a) Zerfall von Be^{9*} aus dem Niveau $E^*_{Be^9} = 1{,}80$ MeV in den Grundzustand von Be^8. Der hierzu notwendige Übergang von Be^{10*} in das Niveau $E^*_{Be^8} = 1{,}80$ MeV ist jedoch, wie aus dem Differenz-Spektrum hervorgeht, nicht sehr ausgeprägt, so dass die ihm entsprechende niederenergetische Gruppe auch relativ schwach sein wird.

b) Zerfall von Be^{10*} in das Niveau $E^*_{Be^9} = 3{,}10$ MeV. Die Energie dieser Gruppe liegt bei $E_{n_2} = 170$ keV. Die auf diesen Zerfall folgende Emission eines zweiten Neutrons n_3 aus dem Niveau mit der Anregungsenergie $E^*_{Be^9} = 3{,}10$ MeV in den Grundzustand von Be^8 erzeugt im Differenz-Spektrum das Maximum in den Intervallen 7, 8 und 9. Mit derselben Häufigkeit R^*_H, mit der diese Intervalle belegt sind, muss demnach die bei 170 keV liegende Gruppe auftreten.

Aus dem Differenz-Spektrum entnimmt man für diese Häufigkeiten folgende Werte:

$$R^*_H(7) = 8{,}5 \qquad R^*_H(8) = R^*_H(9) = 5{,}1$$

und somit für die Summe $\Sigma(g)$ über die Häufigkeiten der Intervalle 7, 8 und 9: $\Sigma(g) = 18{,}7 \pm 12\%$ (der angegebene Fehler entspricht der statistischen Schwankung des unkorrigierten Spektrums). Bei der Berechnung des differentiellen Querschnitts ist diese niederenergetische Neutronen-Gruppe bei 170 keV – im folgenden mit G bezeichnet – zu berücksichtigen. Dies erfordert eine Korrektur der in 6.7. und 6.8. berechneten Grössen $P_Z/2\,\bar{\varepsilon}_P$ und γ.

a) Korrektur von γ. Zu der in 6.8. definierten Summe $\Sigma(n,2n)$ muss der Beitrag der 170 keV Gruppe G addiert werden:

$$\Sigma'(n,2n) = \Sigma(n,2n) + \Sigma(g) = 76{,}2 \pm 13{,}5\%$$

Die Summe $\Sigma(n,n)$ bleibt unverändert. Damit ergibt sich für das korrigierte γ ein Wert von:

$$\gamma' = 1{,}00 \pm 0{,}15\,.$$

b) Korrektur von $P_Z/\bar{\varepsilon}_P$. Dieses Verhältnis bezieht sich nur auf Protonenspuren, die wirklich als solche identifiziert werden konnten, denn bei der Auszählung der Spuren zur Ermittlung von P_Z geben die Neutronen mit 170 keV natürlich keinen Beitrag, da man die von ihnen erzeugten Rückstoss-Protonen gar nicht bemerkt. Die mittlere Wahrscheinlichkeit $\bar{\varepsilon}_P$ wird aus dem bekannten Spektrum oberhalb 500 keV berechnet (siehe 6.5.). Auch hier wird also die Neutronengruppe G nicht berücksichtigt. Man muss demnach die Anzahl der in die Emulsionszelle einfallenden Neutronen z in 2 Gruppen zerlegen: 1. Neutronen mit Energien grösser als 500 keV. Sie werden sowohl beim Auszählen der Spuren als auch bei der Auswertung für das Spektrum erfasst. 2. Die Neutronengruppe G, die sich dem Nachweis mit der Photoplatte entzieht.

Wir schreiben nun für z:

$$z = P_Z/\bar{\varepsilon}_P + X$$

wobei X den Anteil der 170 keV-Gruppe bedeutet, von der wir nun das «Gewicht» $\Sigma(g)$ kennen. Andererseits kennen wir auch das «Gewicht» des Spektrums oberhalb 500 keV: ΣR_H^*. Die absolute Neutronenzahl wird diesen Gewichten proportional sein, das heisst:

$$z \sim (\Sigma\, R_H^* + \Sigma\, (g))$$

Der Beitrag der Neutronengruppe G beträgt nach den obigen Daten 14% der Summe ΣR_H^*, das heisst wir erhalten für das korrigierte Verhältnis $(P_Z/2\,\bar{\varepsilon}_p)'$ einen um 14% höheren Wert:

$$(P_Z/2\,\bar{\varepsilon}_P)' = (3{,}76 \pm 0{,}5) \times 10^3\,.$$

6.10. *Resultat der Querschnitts-Berechnung*

Mit den in 6.1. bis 6.9. berechneten Grössen ergibt sich nun für den differentiellen Querschnitt $\sigma_{\text{diff}}(n,2n)$ für $\varphi = 90°$ und bei einer Neutronen-Energie von 3,7 MeV:

$$\sigma_{\text{diff}}\,(n,\,2\,n) = (39 \pm 8)\ \text{mb/sterad.}$$

Es ist interessant, diesen Wert mit dem Resultat einer Messung von J. M. Fowler *et al.*[7]) zu vergleichen. Bei diesem Experiment wurde ein Be^9-Zylinder mit Neutronen von 3,7 MeV bestrahlt und die Reaktions-Neutronen mit zwei in Koinzidenz arbeitenden Scintillations-Zählern registriert. Es gaben also nur diejenigen Neutronen einen Impuls, die aus einer $(n,2n)$-Reaktion stammten, das heisst man erhielt direkt den $(n,2n)$-Querschnitt. Unter der Annahme einer isotropen Verteilung wurde der totale Querschnitt bei verschiedenen Winkelstellungen der beiden Zähler ermittelt.

So ergab sich beispielsweise für die beiden unserer Anordnung entsprechenden Einstellungen: (90°/0°) und (0°/90°) im Mittel: $\sigma_{\text{tot}} = (340 \pm 75)$ mb. Auf Grund der Isotropie-Annahme dividieren wir diesen Wert des totalen Querschnittes durch $4\,\pi$ und erhalten: $\sigma_{\text{diff}} = (27 \pm 6)$ mb/sterad.

Unser Wert ist demnach bei Berücksichtigung der Fehlerschranken mit dem Ergebnis dieser Messung vereinbar.

Herrn Dr. M. Teucher vom Physikalischen Institut der Universität Bern gebührt unser Dank für das Entwickeln der Ilford-Platten, den Herren H. Weyeneth und E. Merz für den Bau des rotierenden Target.

Literaturverzeichnis

[1]) J. Seitz und P. Huber, Helv. Phys. Acta *28*, 231 (1955).

[2]) F. Ajzenberg und Lauritsen, Rev. Mod. Phys. *27*, 97 (1955). T. Lauritsen, *Energy Levels of Light Nuclei*, Preliminary Report, Nr. 5, Nuclear Science Series.

[3]) C. M. G. Lattes, P. H. Fowler und P. Cuer, Proc. Phys. Soc. (London), *59*, 883 (1947).

[4]) AECU 2040, *Neutron Cross Sections*.

[5]) E. Segrè, *Experimental Nuclear Physics*, Vol. 2, p. 384.

[6]) J. L Fowler, John E. Brolley, Rev. Mod. Phys. *28*, 103 (1956).

[7]) J. M. Fowler, S. S. Hanna und G. E. Owen, Phys. Rev. *98*, 249 (1955). (Querschnitte nach einer Privatinformation von J. M. Fowler *et al.*, Johns Hopkins University.)

Proportionalzählrohr zur Messung schwacher Aktivitäten weicher β-Strahlung

von **F. G. Houtermans** und **H. Oeschger**
Physikalisches Institut der Universität Bern
(19. XI. 1957)

Das Problem bei der Messung schwacher, energiearmer Aktivitäten wie von rezentem Kohlenstoff, von Tritium, sowie von langlebigen β-Strahlern besteht darin, einen Apparat zu finden, der einerseits einen möglichst grossen Zähleffekt und anderseits einen möglichst kleinen Nulleffekt liefert.

Aus Gründen der Zählstatistik ist aber auch vor allem darauf zu achten, dass der Zähleffekt pro Zeiteinheit (und damit in dem gegebenen Verhältnis natürlich auch der Nulleffekt pro Zeiteinheit) so gross wie möglich ist.

Bei den üblichen Anordnungen wird der Nulleffekt reduziert, indem man das Zählrohr mit 150–250 g/cm² schweren Materials abschirmt. Dadurch wird die weiche Komponente der kosmischen Strahlung und der radioaktive Untergrund der Umgebung absorbiert. Mit 10–20 cm Bor-Paraffin werden die durch die kosmische Strahlung im Abschirmmaterial erzeugten Neutronen gebremst und absorbiert, so dass auch die durch Neutronen induzierten Ereignisse ausgeschlossen werden (DE VRIES, 1956).

Die harte Komponente der kosmischen Strahlung wird eliminiert, indem man das Zählrohr mit einem Kranz von Zählrohren umgibt, die in Antikoinzidenz geschaltet sind.

Der restliche Nulleffekt besteht dann im wesentlichen aus drei Komponenten:

1. Aus α- und β-Verunreinigungen des Zählrohrmaterials, im wesentlichen der Wand.

2. Aus Compton-Photo- und Paarelektronen, die durch γ-Quanten, die trotz aller Abschirmung ins Zählrohr gelangen können, hauptsächlich aus dem Wandmaterial des Rohres ausgelöst werden.

3. Aus μ-Mesonen, die das Zählrohr passieren können ohne die Antikoinzidenz auszulösen.

Die Bestrebungen, diesen restlichen Nulleffekt weiter herabzusetzen, gingen bisher in der Richtung, nach Material für Zählrohr und Abschirmung zu suchen, das möglichst rein von radioaktiven Verseuchungen ist.

Die von uns gewählte Anordnung versucht nun noch in anderer Weise den Nulleffekt herabzusetzen (HOUTERMANS und OESCHGER, 1955).

Dabei liegen folgende Gedanken zugrunde:

1. Durch Anwendung von möglichst wenig Wandmaterial zwischen Hauptzählrohr und Antikoinzidenzanordnung soll die «Quellstärke» der ersten und zweiten Komponente herabgesetzt werden.

2. Durch Anwendung von möglichst wenig Absorbermaterial zwischen dem eigentlichen Zählrohr und der Antikoinzidenzanordnung soll es möglich sein, dass härtere Elektronen des Nulleffektes aus dem Hauptzählrohr die Antikoinzidenzanordnung auslösen können.

3. Die dritte Komponente des Nulleffektes soll dadurch herabgesetzt werden, dass die Antikoinzidenzanordnung keinen toten Raum, wie er bei jeder Zählrohrkranzanordnung vorkommt, besitzen soll.

4. Ausserdem soll die Antikoinzidenzanordnung ein grosses Auflösungsvermögen besitzen, damit keine Verluste an Sperrimpulsen entstehen.

5. Da zu erwarten ist, dass die α-Komponente des Nulleffektes in einer solchen Anordnung nicht mehr klein ist gegenüber dem restlichen Nulleffekt, soll durch Diskriminieren gegen grosse Impulse auch dieser Anteil des Nulleffekts unterdrückt werden.

Eine solche Anordnung wird dadurch verwirklicht, dass die Antikoinzidenzanordnung direkt ins Zählrohr eingebaut und vom eigentlichen Zählvolumen nur durch eine dünne Folie getrennt wird (Fig. 2 und 3).

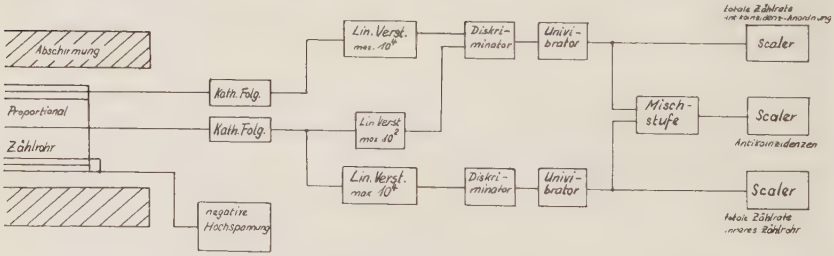


Fig. 1

Das erste Zählrohr dieser Art wurde für die Messung von C^{14} konstruiert. Zu diesem Zweck wurde die Folie gerade noch so dick gewählt, dass darin der grösste Teil der vom inneren Zählrohr kommenden C^{14}-Elektronen ($E_{max} = 155$ KeV, $E_w = 42$ KeV) gebremst wird, da diese, wenn sie das Antikoinzidenzvolumen erreichen, einen Sperrimpuls auslösen und so nicht als Antikoinzidenz gezählt werden. Wegen der relativ kur-

zen Reichweite der β-Strahlen von C^{14} können aber trotzdem die Forderungen 1 und 2 weitgehend befriedigt werden.

In den Raum zwischen Folie und Aussenrohr wird ein Kranz von Drähten eingebaut, die miteinander verbunden sind und als Anode der Antikoinzidenzanordnung dienen. Die dünne Folie ist mit dem Mantel elektrisch verbunden (siehe auch Fig. 1). Das innere Zählrohr und die Anti-

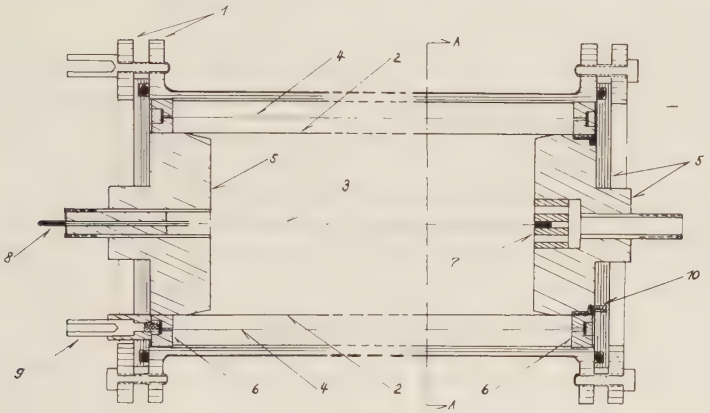


Fig. 2

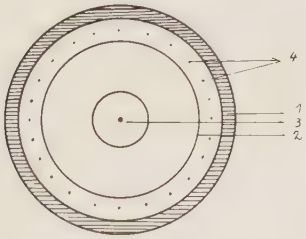


Fig. 3 Schnitt A—A

Legende zu Fig. 2 und 3

1. Zählrohrmantel (rostfreier Stahl, innerer ⌀ 95 mm) mit Flansch und Gegenflansch.
2. Polystyrolfolie (6,7 mg/cm²) mit Aluminium bedampft, zu einem Rohr von 75 mm ⌀ zusammengeklebt.
3. Anodendraht des inneren Zählrohres (rostfreier Stahl 50 μ ⌀), empfindliche Länge 34 cm.
4. Antikoinzidenzanodendrähte (rostfreier Stahl 70 μ ⌀), empfindliche Länge 38 cm.
5. Teflonenden mit Platte aus rostfreiem Stahl.
6. Teflonring zur Befestigung der Antikoinzidenzanodendrähte.
7. Teflonisolator mit Anodendraht des inneren Zählrohres und Bohrungen für Gaseinlass.
8. Anschluss der Anode des inneren Zählrohres.
9. Anschluss der Anode der Antikoinzidenzanordnung.
10. Folienkontakt.

Totales Volumen 2,7 *L*, empfindliches Volumen 1,5 *L*.

koinzidenzanordnung werden mit demselben Gas gefüllt und beide Anordnungen arbeiten im Proportionalbereich.

Wohl besitzt auch eine solche Antikoinzidenzanordnung Zonen geringer Empfindlichkeit, wo die elektrische Feldstärke relativ klein ist und dadurch Verluste an Ionenpaaren durch Rekombination auftreten können, doch fehlt der völlig tote Raum wie er bei der Berührungsstelle zweier Zählrohre vorkommt.

Forderung 4 wird dadurch erfüllt, dass diese Antikoinzidenzanordnung auch im Proportionalbereich arbeitet. Dadurch können Totzeitverluste praktisch vermieden werden. Bei den üblichen Anordnungen mit Geiger-Müller-Zählrohren muss durch eine geeignet gewählte elektronische Schaltung dafür gesorgt werden, dass die Totzeitverluste an Sperrimpulsen nicht zu einer Erhöhung des Nulleffektes führen.

Ausserdem ist es einfacher, die Proportionalimpulse des Hauptzählrohres mit Impulsen vom gleichen Typus zu sperren, anstatt wie üblich mit den langsamer ansteigenden Impulsen der Auslösezählrohre.

Übersicht über die Apparatur

Der Aufbau der Zählapparatur ist aus dem Blockschema (Fig. 1) ersichtlich.

Die Abschirmung besteht aus Eisen, Paraffin und Quecksilber.

Die Proportionalimpulse vom inneren Zählrohr sowie diejenigen von der Antikoinzidenzanordnung gelangen nach dem Verstärker auf Diskriminator und Univibrator. Die normierten Impulse werden dann auf die Antikoinzidenzstufe gegeben.

Es besteht auch die Möglichkeit, die Impulse des inneren Zählrohres abzuzweigen und auf den Diskriminator für die Sperrimpulse zu geben, wodurch auch gegen grosse Impulse (Imp. von α-Teilchen) diskriminiert werden kann (Forderung 5).

Die Anzahl der Antikoinzidenzen, sowie die gesamte Zählrate des inneren Zählrohres und der Antikoinzidenzanordnung werden laufend zur Kontrolle registriert.

Die Apparatur wurde bisher für Altersbestimmungen nach der C^{14}-Methode und gelegentlich auch zur Messung von Tritium benützt. Bei C^{14}-Messungen wird das Zählrohr mit Acethylen bei 710 mm Hg gefüllt. Die Herstellung des Acethylens aus den zu untersuchenden Proben erfolgt nach dem von Suess (Suess, 1954) angegebenen Verfahren.

Konstruktion des Zählrohres

Figur 2 zeigt einen Längsschnitt, Figur 3 einen Querschnitt des Zählrohres.

Für den äusseren Mantel des Zählrohres wurde, wie von Suess (Suess, 1954) für sein Acethylen-Zählrohr, rostfreier Stahl verwendet.

Die Folie besteht aus Polystyrol, das auf beiden Seiten mit Aluminium bedampft ist. Sie wird mit kalthärtendem Araldit zu einem Rohr von gewünschtem Durchmesser zusammengeklebt. Dieses Rohr ist trotz der geringen Dicke (6,7 mg/cm²) noch relativ steif, so dass es nur an den beiden Enden befestigt werden muss. Zu diesem Zweck wird es über die zylinderförmigen Fortsätze der Teflonenden gestülpt, die den gleichen Durchmesser wie das aus der Folie geformte Rohr besitzen.

Die Anode der Antikoinzidenzanordnung besteht aus parallelen Drähten, die zwischen den beiden Teflonringen an den beiden Enden des Zählrohres hin und her gespannt werden. Diese Teflonringe sitzen auf Schultern im Stahlrohr. Der Abstand zwischen zwei benachbarten Drähten ist ungefähr gleich dem Abstand zwischen Zählrohrmantel und Folie.

Die empfindliche Länge der Antikoinzidenzanode ist 4 cm länger als diejenige des inneren Zählrohres, um besser gegen Partikel zu schützen, die von der Seite her einfallen.

Der Anodendraht des inneren Zählrohres wird durch einen Teflonisolator mit Schutzring hinausgeführt. Auf der andern Seite ist er in einem Teflonisolator befestigt.

Abschätzung der optimalen Foliendicke.

Die Anordnung ist um so wirksamer im Herabsetzen des Nulleffektes je dünner die Folie ist. Anderseits soll diese aber doch dick genug sein, um zu verhindern, dass ein grösserer Prozentsatz der im inneren Volumen emittierten zu zählenden β-Strahlen ins Antikoinzidenzvolumen gelangen und dort auch einen Sperrimpuls auslösen.

Damit ein im inneren Volumen emittiertes Elektron das Antikoinzidenzvolumen erreichen kann, muss es erstens trotz Selbstabsorption zur Folie gelangen und zweitens noch genügend Energie besitzen, um diese durchqueren zu können.

Der Bruchteil der Elektronen, die aus dem inneren Volumen austreten, ist gegeben durch den Ausdruck mit dem fünffachen Integral

$$A = \frac{1}{4\pi V} \cdot \int_V \int_{4\pi} e^{-\mu S} \, d\Omega \, dx \, dy \, dz \,,$$

wobei S die innerhalb des Rohres zurückgelegte Entfernung eines an der Stelle x, y, z aus dem Volumenelement $dxdydz$ in den Raumwinkel $d\Omega$ emittierten Teilchens ist.

Dabei wird angenommen, dass sich die Absorption der Elektronen eines β-Spektrums in guter Näherung durch ein Exponentialgesetz darstellen lässt (Gleason, 1951).

Hadwiger hat dieses Integral in einer noch nicht publizierten Arbeit abgeschätzt (Hadwiger, 1957).

*

Nach HADWIGER erhält man unter Berücksichtigung der Dimensionen unseres Zählrohres bei einer Füllung mit 710 mm Hg C_2H_2 (μ/ϱ = 0,26 cm²/mg für C^{14} [GLEASON, 1951]) für A die Schranken:

$$46\% \geqslant A \geqslant 35\% .$$

Im Fall von ganz schwachen Energien (zum Beispiel Tritium) würde nur ein sehr kleiner Bruchteil der im inneren Volumen emittierten Elektronen dieses verlassen. Es wäre daher gar kein absorbierendes Material zwischen dem äusseren und inneren Volumen erforderlich. Man könnte also die Folie zum Beispiel durch parallele Drähte ersetzen, die für die gewünschten elektrischen Feldverhältnisse sorgen würden.

Der Bruchteil der die Folie durchdringenden Strahlung berechnet sich für isotrope Einstrahlung nach der Beziehung:

$$I/I_0 = e^{-\mu d} + \mu d \, Ei \, (-\mu d)$$

Dabei ist I_0 = Anzahl der Elektronen, die auf die Folie auftreffen.
I = Anzahl der Elektronen, die die Folie durchdringen.

Für d = 6,7 mg/cm² (Polystyrolfolie) ist

$$I/I_0 \simeq 4{,}5\%$$

Hieraus folgt, dass im Mittel minimal nur 1,7% und maximal 2,3% der vom C^{14} emittierten Elektronen in das äussere Antikoinzidenzvolumen austreten und durch Auslösen eines Koinzidenzimpulses für die Zählung verloren gehen.

Bei Relativmessungen, wie zum Beispiel bei den C^{14}-Datierungen ist eine genauere Kenntnis dieses Verlustes nicht nötig. Eine weitere Herabsetzung der Foliendicke wäre auch für C^{14}-Messungen ohne grosse Verluste noch möglich, doch reicht dann die Festigkeit der Folie für eine so einfache Halterung im Zählrohr nicht mehr aus.

Zählrohreigenschaften

Das eigentliche Zählrohr unterscheidet sich in Aufbau und Eigenschaften nicht vom üblichen Proportionalzählrohrtyp. Üblicherweise werden Geiger-Müller-Zählrohre in einem Kranz um das Hauptzählrohr herum angeordnet. Dabei ist es aber möglich, dass ein Teilchen diese Anordnung an der Berührungsstelle zweier Zählrohre durchsetzt und keinen Sperrimpuls auslöst. Bei der hier gewählten Anordnung hingegen legt ein von aussen eintretendes Teilchen im Antikoinzidenzvolumen minimal einen Weg von 1 cm zurück, was bei 710 mm Hg C_2H_2 der Bildung von $\sim$ 30 Ionenpaaren entspricht.

Wie Figur 4 zeigt, besitzt die Antikoinzidenzanordnung ein flaches Plateau. Das Einsetzen des Plateaus kann so gedeutet werden, dass bei

der Einsatzspannung die Gasmultiplikation ausreicht, um auch die die minimale Anzahl von Ionenpaaren erzeugenden Partikel zu registrieren.

Die Brauchbarkeit dieser Antikoinzidenzanordnung für die Messung schwacher Aktivitäten hängt davon ab, ob sie wirklich in der Lage ist, für jedes durchgehende geladene Teilchen einen Sperrimpuls zu liefern.

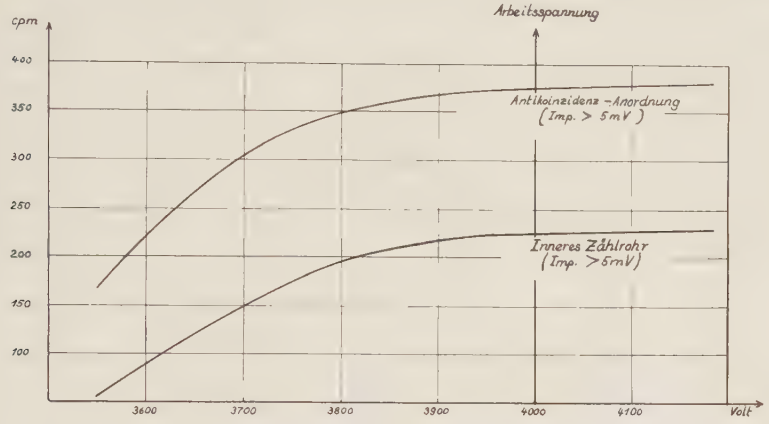


Fig. 4

Ausserdem soll diese Forderung über einen ziemlich grossen Spannungsbereich erfüllt sein, um eine genügende Stabilität zu gewährleisten. Eine Verminderung der Zählspannung der Antikoinzidenzanordnung um mehr als hundert Volt hat aber ebensowenig eine spürbare Auswirkung auf den Nulleffekt, wie eine Herabsetzung der elektronischen Verstärkung auf 50% ihres üblichen Wertes. Die Antikoinzidenzanordnung kann also ihre Funktion auch bei relativ grossen Schwankungen der Gasmultiplikation sowie der elektronischen Verstärkung erfüllen. Sie steht, was die Stabilität anbelangt, in keiner Weise hinter der üblichen Anordnung zurück. Ausserdem ist ein Lebensdauereffekt praktisch nicht möglich, da die Gasfüllung immer wieder erneuert wird und da man im Proportionalbereich arbeitet.

Der Nulleffekt

In Tabelle 1 sind die mit diesem Zählrohr, bei einer Füllung von 710 mm C_2H_2 aus fossilem Kohlenstoff, gemessenen Nulleffekte dargestellt. Die dabei gewählte Abschirmung geht aus Figur 5 hervor.

Bei diesen Messungen wurden alle Impulse, die am Eingang grösser als 400 mV waren, abgeschnitten. Dieses Abschneiden der grossen Impulse gab eine Reduktion des Nulleffektes um $0{,}3_0$ Imp./Min.

Die Paraffinabschirmung setzte den Nulleffekt um $0{,}4_0$ Imp./Min. herab.

Die Herabsetzung der Zählrate von γ-Strahlen durch die Antikoinzidenzanordnung wurde mit Hilfe einer C_0^{60}-Quelle ausprobiert. Der Zähl-

Tabelle 1

Anordnung		Nulleffekte (Imp./Min.)	Foliendicke
ohne Abschirmung . .	ohne Antikoinzidenz	450	
mit Abschirmung. . .		217	
mit Abschirmung. . .	mit Antikoinzidenz	$1{,}2_0$	6,7 mg/cm²
ohne Paraffin		$0{,}9_5$	4,5 mg/cm²
mit Abschirmung mit Paraffin . . .		$0{,}8_0$	6,7 mg/cm²
Abschirmung nur 5 cm Pb	mit Antikoinzidenz	$2{,}2_0$	6,7 mg/cm²

effekt einer C_0-Quelle, die in der Verlängerung der Zählrohrachse ausserhalb der Abschirmung aufgestellt war, wurde bei arbeitender Antikoinzi-

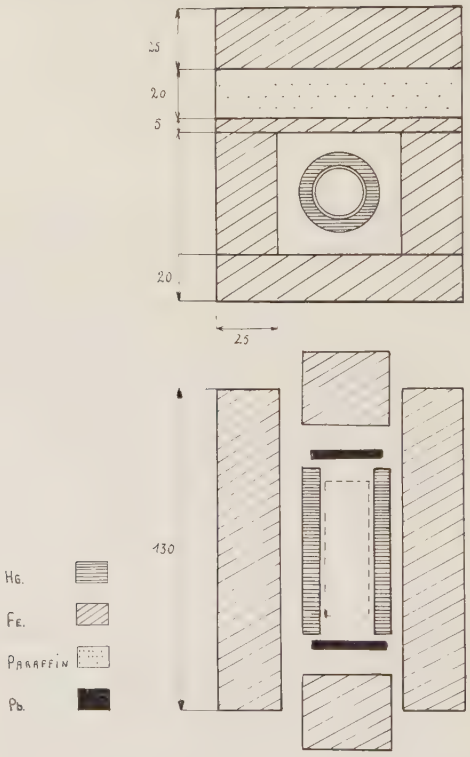


Fig. 5

denz auf $^1/_3$ reduziert. Wird die C_0-Quelle auch ausserhalb der Abschirmung aber in senkrechter Richtung zur Zählrohrachse ausgestellt, beträgt der Reduktionsfaktor sogar 8.

Bei einer starken Verseuchung des Zählrohres mit Radon konnte die Herabsetzung der β-Komponente der Tochtersubstanzen von Radon untersucht werden. Bei Gleichgewicht bis zum Ra C′ wurden ohne Antikoinzidenz 1,50 β-Impulse pro 1 α-Impuls registriert. Bei arbeitender Antikoinzidenz hingegen nur 0,53 β-Impulse pro 1 α-Impuls.

Auch bei der Verwendung von Füllgas, das lange genug gelagert war, um die Anwesenheit auch der kleinsten Spuren von Radon-Verseuchung auszuschliessen, zeigt sich eine merkliche α-Komponente im Nulleffekt, zu der auch eine entsprechende Anzahl von β-Impulsen gehört. Nach Öffnen des Zählrohres und insbesondere dann, wenn die Folie längere Zeit an Laborluft gelegen hatte, zeigte sich ein Anstieg sowohl der α-Komponente wie auch des β-Anteils des Nulleffektes. Dieser Anstieg ist auf das aus dem Radongehalt der Luft entstehende Ra *D*, Ra *E* und Ra *F* zurückzuführen. Bei der Benützung des Zählrohres ist es also nach Möglichkeit zu vermeiden, dieses zu öffnen.

Aus der Unabhängigkeit des Nulleffektes über einen grossen Verstärkungsbereich der Antikoinzidenz lässt sich schliessen, dass alle die Antikoinzidenz passierenden ionisierenden Partikel wirklich einen Sperrimpuls auslösen. Hingegen kann ein Beitrag zum Nulleffekt von Partikeln herrühren, die das innere Zählrohr angenähert parallel zur Achse durchqueren und daher das Antikoinzidenzvolumen nicht passieren. Der Nulleffekt ist mit diesem Zählrohr schon so weit herabgesetzt worden, dass von einer Antikoinzidenzanordnung an den beiden Zählrohrenden eine ins Gewicht fallende Herabsetzung des restlichen Nulleffektes zu erwarten wäre. Diese würde ja auch Impulse eliminieren, die von Elektronen herrühren, die erzeugt durch γ-Quanten im Zählgas oder in der Folie, das innere Zählrohr in Richtung der Enden verlassen.

Bei konstanten Verhältnissen von Zählrohr und Abschirmung blieben die Schwankungen des Nulleffektes im Rahmen der statistisch zu erwartenden (1 σ nach 15 h $\sim$ 0,03 Imp./min).

Vergleich mit anderen Apparaturen

Um die Nulleffekte verschieden grosser Zählrohre einigermassen miteinander vergleichen zu können, ist es nötig, diese auf gleiche Kathodenflächen zu beziehen. In der Tabelle 2, die eine Zusammenstellung von C^{14}-Apparaturen mit den kleinsten Nulleffekten zeigt, sind daher auch die spez. Nulleffekte (Nulleffekte pro cm^2 der Kathodenoberfläche) aufgeführt. Der Faktor *G* erlaubt es, Apparaturen mit verschiedener Messtechnik bei verschiedenen Zählrohrdimensionen miteinander zu vergleichen.

Er ist folgendermassen definiert:

$$G = \frac{\text{Nettoeffekt für modernen Kohlenstoff/min cm}^3}{\text{Nulleffekt/min cm}^2}.$$

Tabelle 2

	Gas	Vol (l)	Druck (Atm.)	Mod. C (Imp/min)	Null-effekt (Imp/min)	Spez. Null-effekt (Imp/min cm²)	G (cm^{-1})
Fergusson (Fergusson 1955)	CO_2	7	3 1	103 37,5	14 9,8	0,0045	2,3
De Vries (De Vries 1957)	CO_2	0,73	3	14,6	0,61*	0,00105	19
Suess (Suess 1955)	C_2H_2	1		15,8	2,3	0,0040	3,9
Unsere Anordnung	C_2H_2	1,5	1	15,2	0,80*	0,0010	10

* Bei diesen Nulleffekten wurden die Impulse, deren Grösse einem Energieverlust entsprechen, der grösser als die Maximalenergie des C^{14}-Spektrums ist, nicht gezählt.

Die Kathodenflächen wurden nach den in den zitierten Arbeiten enthaltenen Angaben abgeschätzt.

Das Verhältnis des Zähleffektes von modernem Kohlenstoff zum Nulleffekt beträgt bei unserer Anordnung 19. Es könnte noch verbessert werden, indem man bei höherem Druck des Zählgases oder mit grösserem Zählrohr arbeiten würde. Aus Tabelle 2 geht hervor, dass ein so kleiner Nulleffekt bei den gewöhnlichen Antikoinzidenzanordnungen nur mit Hilfe von ausgesuchtesten Materialien für Zählrohr und Abschirmung erreicht werden kann (De Vries, 1957).

Literaturverzeichnis

(De Vries 1956): Hl. De Vries, Nucl. Physics *1*, 477 (1956).
(De Vries 1957): Hl. De Vries, Nucl. Physics *3*, 65 (1957).
(Fergusson 1955): G. J. Fergusson, Nucl. *13*, 18 (1955).
(Gleason u. a. 1951): G. I. Gleason, I. D. Taylor und D. L. Tabern, Nucl. *8*, 12 (1951).
(Hadwiger 1957): H. Hadwiger, private Mitteilung.
(Houtermans und Oeschger 1955): Helv. Phys. Acta *28*, 464 (1955).
(Suess 1954): H. Suess, Science *120*, 6 (1954).
(Suess 1955): H. Suess, Science *122*, 415 (1955).

Theory of the scattering operator*)

by **J. M. Jauch**

Department of Physics, State University of Iowa, Iowa City, Iowa

(17. XI. 1957)

Abstract. In this paper we give a complete theory of the scattering operator on a rigorous mathematical foundation for a certain class of quantum mechanical systems called, 'simple scattering systems'. These systems are characterized by three properties formulated in Section 3. The relation of these properties to the physical content of scattering is explained. We then proceed to define the wave operator and the scattering operator and prove their existence with mathematically rigorous methods. No assumptions are needed regarding the occurrence of bound states and the location of their energy with respect to the continuum region of the total energy operator. In Section 4 we demonstrate the existence of a certain integral representation of the scattering operator which has often been used as a starting point of the iteration approximation. Certain general properties of scattering systems are obtained in Section 5. This leads to necessary conditions for systems to be scattering systems as well as to a new definition of the scattering operator. The paper concludes with a derivation of the scattering cross-section from the scattering operator. The improvement of this derivation over the older ones consists in the special care employed for stating the assumptions which must go into such a derivation and the avoidence of improper functions or other artificial devices.

1. Introduction

It is generally recognized that the scattering operator is one of the most fundamental concepts in elementary wave mechanics as well as in relativistic field theories. Yet a mathematically meaningful definition of this operator does not seem to be known. It is the purpose of this paper to supply such a definition and to prove the existence of this operator under certain assumptions which characterize the scattering systems.

All the 'definitions' usually employed are of a purely formal character based on a mathematical formalism which is simply derived from the analogy between the Hilbert space and the finite-dimensional vector spaces. These analogies exist but only to a limited extent and for the questions centering around the concept of the scattering operator the properties, for which this analogy fails, are the most important ones.

There has been a widely felt need for a satisfactory treatment of the mathematical theory of scattering. However, all recent attempts in this

*) Supported by the National Science Foundation.

direction have fallen short of this objective and have remained inconclusive and heuristic in character[1–10]*).

In order to make any progress in the mathematical scattering theory it seemed to us essential to approach these problems with a new standard of rigor and with mathematical methods of a more recent vintage than the ones now generally employed by theoretical physicists. We hope that this approach will eventually throw some light on many of the questions in relativistic field theories which hitherto have been obscured by the lack of rigor generally prevailing in theoretical physics.

The main problem in such an endeavor has been to reformulate the physical scattering process in terms of a meaningful mathematical language. The commonly employed method of representing scattering states by non-normalizable wave functions leads to difficulties because it does not seem possible to introduce a suitable topology in a function space which contains these wave functions[11]). Under such circumstances the studying of limiting properties becomes exceedingly complicated.

We have, therefore, abandoned this approach and have developed a scattering theory in which the states of the physical system are represented by the elements of a Hilbertspace consisting of L^2-functions in a suitable domain. Besides the mathematical reasons there are good physical reasons why we believe this to be desirable. The matrix elements of such functions have a direct and simple physical interpretation as the probability amplitudes for the result of certain measurements. This interpretation is lost in the function spaces of larger extent than the L^2-space. It can only be reintroduced by certain artificial devices, such as very large boxes or the consideration of an infinite assembly of identical systems. The artificiality of these devices merely exemplifies the inadequacy of the mathematical description.

In order to keep the mathematical language meaningful throughout it is essential to refrain from using improper functions, such as the Dirac δ-function, and it is necessary to pay full attention to the domain of linear operators and in the study of limiting relations the underlying topology must be specified.

As regards the δ-function, we are aware that in many instances its use is a convenient and in most cases harmless symbolic notation for a sometimes cumbersome limiting relation. However, this is not always the case and the indiscriminate use of this device has obscured the mathematical difficulties which still beset the general field theories. Besides, there is

*) *Note added in proof:* The interesting paper by J. M. Cook, Journ. of Math. and Phys. **36**, 81 (1957) has just come to our attention. It is a notable exception to the above statement. According to this paper any system with a square integrable interaction potential is a "simple scattering system" as defined in this paper.

really no good reason to retain this mathematical fiction invented at a time when the mathematics of Hilbert space and functional analysis was little known to physicists. This well developed and easily accessible branch of mathematics contains most of the tools needed for handling the mathematical problems involved in the theory of scattering.

In the present paper we restrict ourselves to a rather simple class of scattering systems for which the existence problem can be rigorously formulated and solved. This class contains the wave-mechanical scattering systems involving only one single channel but it excludes so far all reaction processes such as they occur in nuclear collisions and in particle creation and annihilation processes. The formulation is of sufficient latitude to allow the necessary generalizations to the cases of scattering with a finite number of channels. The cases involving infinitely many channels such as they occur in field theory are much more difficult to treat and lead to mathematical problems which have not even been properly formulated at the present time.

Even within the limitations which we have imposed we need certain mathematical results in the theory of functional analysis. Since these are not generally known by physicists to which this paper addresses itself primarily, we have given in section 2 a very brief review of some of the definitions and theorems (without proofs) which are used in the rest of the paper.

2. Mathematical Preliminaries

In this section we shall give some of the basic definitions as well as some of the more important theorems needed in the rest of the paper[13]).

The statevectors of a physical system are in one-to-one correspondence with the normalized elements of a Hilbert space $\mathfrak{H}$. This space is usually realized in terms of the quadratically integrable functions on a Euclidean space of finite dimensions. For the intrinsic properties of the Hilbert space its particular realization by such functions is not essential and we can therefore express them in the abstract form in which no reference is made to such a realization.

A Hilbert space is a set of elements, denoted by $f, g \ldots$, which satisfy the following properties:

(1) They form a linear vectorspace over the complex numbers.
(2) There exists a positive definite scalar product.
(3) The space is complete.
(4) The space is separable.

The first two properties are so well-known that very little comment is needed. We merely mention that the scalar product between two elements $f, g \in \mathfrak{H}$ will be denoted by (f, g). The scalar product serves to intro-

duce a *metric* in $\mathfrak{H}$. The *distance* between two elements $f, g \in \mathfrak{H}$ is the positive square root

$$\| f - g \| = \sqrt{(f-g), (f-g)}\,.$$

The following inequalities will be frequently used

$$|(f, g)| \leqslant \|f\| \, \|g\|\,,$$
$$\|f + g\| \leqslant \|f\| + \|g\|\,.$$

Properties (3) and (4) are automatically satisfied for finite-dimensional vectorspaces and it is for this reason that physicists usually pay no attention to them*).

Roughly speaking condition (3) ensures that the space is large enough while (4) ensures that it is not too large. Condition (3) can be explained most easily in terms of fundamental sequences:

A sequence $\{f_n\}$ of elements $f_n \in \mathfrak{H}$ is a *fundamental sequence* if for each $\varepsilon > 0$ there exists an N such that

$$\|f_n - f_m\| < \varepsilon \quad \text{for all} \quad n, m > N\,.$$

Condition (3) states that every fundamental sequence has a limit. Thus if $\{f_n\}$ is such a sequence then there exists an element $f \in \mathfrak{H}$ with the property: For all $\varepsilon > 0$ one can select a positive integer N, such that

$$\|f - f_n\| < \varepsilon \quad \text{for all} \quad n > N\,.$$

The limit concept used here refers to the so-called *strong topology* in $\mathfrak{H}$ There is another type of limit which defines a *weak topology*: f_n converges weakly to f, in symbols

$$f \rightharpoonup f_n \quad \text{for} \quad n \to \infty$$

if

$$(g, f_n) \to (g, f) \quad \text{for all} \quad g \in \mathfrak{H}\,.$$

Strong convergence always implies weak convergence but *not* vice versa. We shall work almost exclusively with the strong topology and strong limits will always be implied unless a statement to the contrary is made.

If M is a subset of elements in $\mathfrak{H}$ we can add to M all its limit points and obtain its closure $\overline{M}$. Obviously $M \subset \overline{M}$ and $M = \overline{M}$. Property (4) says that there exists a countable subset M of $\mathfrak{H}$ such that

$$M = \mathfrak{H}\,.$$

Property (4) is always satisfied for the elementary systems in Quantum

*) It may be noted that we have not introduced a dimension axiom as it is often done for the Hilbert space. Hence all finite dimensional spaces are included in this definition. For quantum mechanical systems this is often convenient.

Mechanics but is *not satisfied* for the systems described by a quantized field theory. When (4) is not satisfied we refer to a non-separable Hilbert space. The fact that (4) is violated for field theories is one of the main obstacles for a theory of the scattering operator in these cases.

The following concepts will be used frequently throughout the rest of this paper but they will not be explained.

Linear manifolds and closed linear manifolds (the latter are also called subspaces), orthogonal complements, projection operators, orthogonal systems and complete orthogonal systems, bounded and unbounded linear operators domains of definition, unitary and self-adjoint operators.

These concepts are explained in detail in any of the mentioned references.

We shall state two theorems on functionals which have been found useful in connection with our problem. We precede them by two definitions:

A function $\Phi(f)$ with domain $\mathfrak{H}$ and values in the complex numbers C is called a *linear functional* if it satisfies the following two properties:

$$\Phi(\lambda f + \mu g) = \lambda \Phi(f) + \mu \Phi(g); \quad \lambda, \mu \varepsilon C; \quad f, g \varepsilon H . \tag{a}$$

$$| \varphi(f) | \leqslant A \| f \| \quad A \text{ fixed } > 0 . \tag{b}$$

A function $\Phi(f, g)$ with domain $\mathfrak{H} \times \mathfrak{H}$ (the topological product of $\mathfrak{H}$ with itself) and values in the complex numbers C is called a *bilinear functional* if it satisfies the following three properties:

$$\Phi(\lambda_1 f_1 + \lambda_2 f_2, g) = \lambda_1^* \Phi(f_1, g) + \lambda_2^* \Phi(f_2, g) \tag{a}$$

$$\Phi(f, \mu_1 g_1 + \mu_2 g_2) = \mu_1 \Phi(f, g_1) + \mu_2 \Phi(f, g_2) \tag{b}$$

$$|\Phi(f, g) | \leqslant B \| f \| \ \| g \| , \quad B \text{ fixed} > 0 . \tag{c}$$

The two theorems are: Every linear functional $\Phi(f)$ is of the form

$$\Phi(f) = (g, f)$$

with some fixed $g \varepsilon \mathfrak{H}$ (Riesz-Fréchet). For every bilinear functional $\Phi(f, g)$ there exists a bounded linear operator A such that

$$\Phi(f, g) = (f, A g) .$$

The bound of A is given by

$$\| A \| = \underset{f, g \varepsilon \mathfrak{H}}{l. u. b.} \frac{\Phi(f, g)}{\| f \| \| g \|} \equiv \| \Phi \| .$$

The second theorem is a simple consequence of the first.

We further need the spectral theorems for the selfadjoint and unitary operators. The following definition is used in this connection:

A family of projection operators $E(\lambda)$ (λ real) is said to be *non-decrasing* with λ if for every $f \varepsilon \mathfrak{H}$

$$(f, E(\lambda_1) f) \leqslant (f, E(\lambda_2) f) \text{ for } \lambda_1 \leqslant \lambda_2;$$

we write

$$E(\lambda_1) \leqslant E(\lambda_2).$$

The spectral theorem for self adjoint operators may now be stated as follows: To every self-adjoint operator A there exists a non-decreasing family of projection operators such that

$$E(-\infty) = 0, \quad E(+\infty) = I$$

and

$$A = \int_{-\infty}^{+\infty} \lambda \, dE(\lambda).$$

In this expression the integral is to be interpreted as the Stieltjes integral valid for any pair of elements $f, g \varepsilon \mathfrak{H}$:

$$(f, Ag) = \int_{-\infty}^{+\infty} \lambda \, d(f, E(\lambda) g).$$

The spectral representation is most useful for the definition of the functions of a self-adjoint operator. If $F(\lambda)$ is a function of the real variable λ the function $F(A)$ is defined as

$$F(A) = \int_{-\infty}^{+\infty} F(\lambda) \, dE(\lambda).$$

The domain of definition $D_{F(A)}$ is the linear manifold of all $f \varepsilon \mathfrak{H}$ for which

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |F(\lambda)|^2 \, d(f, E(\lambda) f) < \infty.$$

We shall be dealing primarily with unitary operator families U_t depending on a parameter t and expressible in terms of a self-adjoint operator A as an exponential function

$$U_t = e^{iAt} \quad (t \text{ real}).$$

It follows from the above definition that

$$U_t = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\lambda t} \, dE(\lambda)$$

and that the domain of definition of U_t is the whole of $\mathfrak{H}$. The operator family U_t satisfies

$$U_t U_s = U_{t+s} = U_s U_t$$

and it is a *representation* of the additive group of real numbers.

Two self-adjoint operators A and B are said to be unitarily equivalent if there exists a unitary operator X such that the domains of B and XAX^{-1} are equal and that throughout this domain $Bf = XAX^{-1}$. If $E(\lambda)$ and $F(\lambda)$ are the spectral families of A and B then

$$F(\lambda) = X\, E(\lambda)\, X^{-1}$$

for all λ. It follows from this that the corresponding operators $U_t = e^{iA}$ and $V_t = e^{iBt}$ are also unitarily equivalent, that is

$$V_t = X\, U_t\, X^{-1}$$

for all t. In this case we also write $V_t \simeq U_t$. This is an equivalence relation.

In the fifth section we shall have occasion to introduce subspaces invariant under a unitary group representation such as U_t. A set $M \subset \mathfrak{H}$ is said to be a subspace invariant under U_t if it is a closed linear manifold and if for any $f \in M$, $U_t f \in M$ for all t.

If $N = M^{\perp}$ is the orthogonal complement of M and M is an invariant subspace then N is too.

If E_M and E_N are the projection operators corresponding to these two subspaces, such that

$$E_M E_N = E_N E_M = 0$$

$$E_M + E_N = I\,,$$

then

$$U_t E_M = E_M U_t \equiv {}^M U_t\,.$$

and

$$U_t E_N = E_N U_t \equiv {}^N U_t\,.$$

The representations ${}^M U_t$ and ${}^N U_t$ are said to be the *reduction* of U_t to M and N respectively. We always have

$${}^M U_t + {}^N U_t = U_t$$

and we say U_t is *decomposed*. The representations U_t and U_t are called *subrepresentations* of U_t.

If U_t is equivalent to some subrepresentation ${}^M V_t$ of V_t then we say U_t is *contained* in V_t. We use the notation $U_t \lesssim V_t$ for this situation.

3. Definition of a Scattering System

The dynamical properties of a quantum mechanical system are contained in the structure of a self-adjoint linear operator H operating in a separable Hilbert space $\mathfrak{H}$. The operator represents the total energy of the system. In the more interesting systems H is an unbounded operator. However, in all systems the energy has a *lower* bound. An operator with this property is called *semi-bounded*. The mathematical expression for this is

$$(f, Hf) \geqslant 0 \qquad \text{for} \quad f \varepsilon D_H . \tag{3.1}$$

Here D_H is the domain of definition of H which is everywhere dense in $\mathfrak{H}$ and we have arbitrarily put the lower bound of H equal to zero which is no restriction since an additive constant in H can always be adjusted without changing the physical content of the system.

We wish to introduce now additional restrictions on H which select from the class of all quantum mechanical systems a certain subclass which we shall call the *scattering systems*.

In order to motivate these restrictions we shall for a moment digress to the intuitive description of a scattering process. Such a process must be visualized essentially in three stages. In the first stage we have a number of incident particles (in practice either one or two) approaching each other (or in the case of one particle, approaching the scatterer). In the second stage which lasts only a very short time compared with the duration of the whole process a collision occurs. After the collision a number of particles emerge with their direction of motion different from the original direction. This is the third stage.

This intuitive picture is at the basis of the theory of scattering. The problem is to find the adequate mathematical language for the expression of this physical situation. In the description which we have given we have not made the assumption that the numbers or even the kind of particles are the same before and after the collision process, nor have we implied anything concerning internal degrees of freedom such as a spin or isotopic spin for the particles partaking in the scattering process. The mathematical description should be sufficiently broad so as to include these cases.

The essential feature of the scattering process is that in the remote past and in the distant future the motion of the particle is 'free'. This means that in the limit $t \to \pm \infty$ no interaction between the particles is operating. The time development of such 'free' particles is governed by a 'free' Hamiltonian which represents the total kinetic energy of the participating particles. These free Hamiltonians H_α depend on the number and kind of incident or emerging particles. They always have either one

of the following forms, depending on whether we treat the particles relativistically or not.

$$H_\alpha = \sum_\nu \frac{1}{2m_\nu} \boldsymbol{p}_\nu^2 , \tag{3.2}$$

$$H_\alpha = \sum_\nu \sqrt{m_\nu^2 + \boldsymbol{p}_\nu^2} . \tag{3.3}$$

Here $\boldsymbol{p}_\nu$ represents the momentum operator of the particle, m_ν its mass. The operators $\boldsymbol{p}_\nu$ are self-adjoint and the positive square root in (3.3) is defined in the manner as indicated in the preceding section. The index α distinguishes the various kinds and numbers of particles which can participate in the scattering process and it is called the *channel index*. Whichever form of H_α is adopted, these operators are always semi-bounded self-adjoint linear operators such that

$$(f, H_\alpha f) \geqslant 0 \qquad (f \varepsilon D_{H_\alpha}) . \tag{3.4}$$

In order to simplify the mathematical formulation we shall restrict ourselves in this paper to the case of only one channel. We speak then of a single channel scattering and the system is called a 'simple' scattering system. The corresponding free Hamiltonian will be denoted by H_0. The number of particles participating in the collision is either one or two and it is the same before and after the collision. Instead of the operators H_0 and H it is more convenient to introduce the unitary operators U_t and V_t defined by

$$\begin{aligned} U_t &= e^{-iH_0 t} \\ V_t &= e^{-iHt} . \end{aligned} \tag{3.5}$$

The unitary property is expressed by

$$\begin{aligned} U_t^* &= U_{-t} \\ V_t^* &= V_{-t} . \end{aligned} \tag{3.6}$$

The advantage of the operators U_t and V_t is that they are defined everywhere in $\mathfrak{H}$ while H_0 and H are only defined in everywhere dense linear manifolds. It is then not necessary to indicate the domain of definition of these operators and they can be freely multiplied without restrictions since the range of one is always contained in the domain of the other.

In the usual formulation of scattering theory the initial and final states are always represented in the form of plane waves and these are called 'eigen states' of the operator H_0.

It is here that our formulation of the scattering theory departs from the usual one. The spectrum of the operator H_0 is always continuous, hence *there exist no* 'eigen states' in the underlying Hilbert space.

The correct formulation of initial and final states is in terms of *wave packets*, that is, elements $f \varepsilon \mathfrak{H}$. This formulation, incidentally, corresponds much closer to the actual physical situation than the plane-wave representation which is physically an abstraction and mathematically most inconvenient because plane-waves are not contained in $\mathfrak{H}$.

The first condition which is necessary for a system to be a scattering system is that the limits

$$\lim_{t \to \pm\infty} V_t^* U_t f = f_\pm \tag{I}$$

exist*) for all $f \varepsilon \mathfrak{H}$.

The set of elements which are limits in the sense of (I) are denoted by $R_\pm$. The second condition which we require is that these two sets are identical:

$$R_+ = R_- = R\,. \tag{II}$$

We shall now show that these conditions contain the essential ingredients of the usual formulation of the scattering theory. The elements of the form

$$f_+ = \lim_{t \to -\infty} V_t^* U_t f$$

are those states which in the usual presentation of scattering theory are represented by 'plane waves' plus 'outgoing scattered waves'. Similarly the f_- correspond to 'plane waves' plus 'ingoing scattered waves'. The significance of the limits (I) can be illuminated by the following remarks: If the limit I exists, then, for instance, the limit

$$\lim_{t \to -\infty} U_t^* V_t f_+ = f \tag{3.7}$$

exists also. This may be seen as follows: (I) means that for $\varepsilon > 0$, arbitrary, there exists a T such that

$$\| V_t^* U_t f - f_+ \| < \varepsilon$$

for all $t > T$, since V_t and U_t are unitary we also have

$$\| V_t^* U_t f - f_+ \| = \| f - U_t^* V_t f_+ \| < \varepsilon$$

for the same t.

The vector $g(t) = U_t^* V_t g$ has a familiar interpretation. It represents a state of the system in the *interaction picture* when g represents that same state in the *Heisenberg picture*. Hence the existence of this limit

*) The existence of the limit $t \to +\infty$ can be proved if the limit $t \to -\infty$ exists and vice versa if an additional assumption is made expressing invariance of the system under the time reversal transformation. This point will be elaborated elsewhere and will not be persued further here.

means that the state in the interaction picture approaches a constant as $t \to -\infty$. Now in the interaction picture the states change only because of the interaction operator $H - H_0$. The fact that these states approach a constant means that the interaction becomes ineffective for the remote past. Because of condition (II) a similar statement holds for the limit $t \to +\infty$. This is precisely the physical property we mean to imply with a scattering system.

To the two conditions we shall add a third condition which we shall take as characterizing the *simple scattering systems*. In order to formulate this condition we define the subspace M consisting of the closed linear manifold spanned by the proper elements of H, that is, all elements of the form

$$H f = \omega f \qquad (\omega \text{ real}) .$$

The orthogonal complement $M^{\perp}$ of M is denoted by N and elements in N are said to belong to the continuum of H. The third condition then requires that

$$N \mathbf{C} R . \tag{III}$$

We shall prove in the next section that always $R \mathbf{C} N$. Hence (III) can also be replaced by $N = R$. The meaning of this condition is that there are no states in the continuum of H which are not scattering states associated with H_0. If there were such states the description of the scattering states in terms of H and H_0 alone would be incomplete. This is precisely the situation in the multichannel scattering processes; hence we shall adopt condition (III) as characterizing the simple scattering systems.

We shall now derive a few simple conclusions from these properties of scattering systems. The mapping $f \to f_{\pm}$ of $\mathfrak{H}$ onto R is a linear mapping and an isometry. The linear property of the mapping is obvious. We verify the isometry: $\| f \| = \| f_{\pm} \|$.

Since $\| V_t^* U_t f \| = \| f \|$ the left-hand side is independent of t. Hence in the limit

$$\| f \| = \| f_{\pm} \|$$

We can therefore introduce a pair of bounded linear aperators $\Omega_{\pm}$ defined in all of $\mathfrak{H}$ and with range R such that

$$\Omega_{\pm} f = f_{\pm} \quad \text{or} \quad \Omega_{\pm} = \lim_{t \to \mp\infty} V_t^* U_t \tag{3.8}$$

the bound of $\Omega_{\pm}$ is $\| \Omega_{\pm} \| = 1$. These operators will be called the 'wave-operators'. Since Ω is isometric R is a subspace.

*

Let Ω be either one of the wave-operators. Since Ω is bounded and defined everywhere we can define everywhere in $\mathfrak{H}$ the adjoint operator Ω^* as a bounded linear operator with the defining property

$$(\Omega^* f, g) = (f, \Omega g) . \tag{3.9}$$

for all $g \varepsilon \mathfrak{H}$. Let Q be the set of elements $f \varepsilon \mathfrak{H}$ such that

$$\Omega^* f = 0 . \tag{3.10}$$

From the defining property (3.9) it follows immediately that $f \varepsilon Q$ implies $f \varepsilon R^\perp$ (the orthogonal complement of R). Similarly if $f \varepsilon R^\perp$ then $(\Omega^* f, g) = 0$ for all g or $\Omega^* f = 0$ that is $f \varepsilon Q$. Thus $Q = R^\perp$. On the other hand if $f \varepsilon R$ then there exists a $g \varepsilon \mathfrak{H}$ such that $\Omega g = f$. Hence because of (3.8) $\Omega^* f = \Omega^* \Omega g = g$. Thus the operator $\Omega\Omega^*$ is defined everywhere and it is the projection operator E_R with respect to R

$$\Omega_+ \Omega_+^* = E_R = I - E_Q , \tag{3.11}$$

and

$$\Omega_\pm^* \Omega_\pm = I .$$

The projection E_Q may be called the *unitary deficiency* of the wave operator.

It is important to note that the right-hand side is independent of the sign attached to Ω. This is an important consequence of condition (II). A further property of the projection E_Q may be noted. Because of the definition (3.10) of Q we have

$$\Omega_+^* E_Q = \Omega_-^* E_Q = E_Q \Omega_- = E_Q \Omega_+ = 0 .$$

From this follows immediately that the operator

$$S = \Omega_-^* \Omega_+ \tag{3.12}$$

is unitary. Indeed

$$S^* S = \Omega_+^* \Omega_- \Omega_-^* \Omega_+ = \Omega_+^* (I - E_Q) \Omega_+ = \Omega_+^* \Omega_+ = I$$

and

$$SS^* = \Omega_-^* \Omega_+ \Omega_+^* \Omega_- = \Omega_-^* (I - E_Q) \Omega_-^* \Omega_- = I .$$

The unitary operator (3.12) is the scattering operator.

4. Integral Representations of the Wave Operator

In a previous publication we have given explicit integral representations of the operators $\Omega_\pm$ which can be made the starting point of certain approximation methods for determining these operators[1]. These representations were purely formal in character and a proof of their existence has never been given. In this section we shall give such an existence proof for the case of simple scattering systems.

We begin by stating and proving a few lemmata.

Lemma 1. The elements $U_t f$ and $U_t^* f$ are strongly continuous functions of the real variable t for all t and all $f \in \mathfrak{H}$.

Proof: Strong continuity of $U_t f$ at $t = t_0$ means that for $\varepsilon > 0$, there exists a $\delta > 0$ such that

$$\| U_t f - U_{t_0} f \| < \varepsilon \quad \text{for } | t - t_0 | < \delta . \tag{4.1}$$

Because of the group property and the unitary property of U_t this is equivalent to continuity at $t = 0$:

$$\| (I - U_t) f \| < \varepsilon \quad \text{for } | t | < \delta . \tag{4.2}$$

This expression can be put into a slightly more convenient form by writing

$$\| (I - U_t) f \| = \sqrt{((I - U_t) f, (I - U_t) f)} = \sqrt{(f, (2 - U_t - U_{-t}) f)} . \tag{3.3}$$

Since $U_t = e^{-iH_0 t}$, and H_0 is self adjoint, there exists a sequence of non-decreasing projection operators $E(\lambda)$ $(-\infty < \lambda < +\infty)$ such that

$$E(-\infty) = 0 , \qquad E(+\infty) = I \tag{4.4}$$

and

$$(f, U_t f) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\lambda t} \, d(f, E(\lambda) f) . \tag{4.5}$$

When this is substituted in (4.3) and (4.4) is used we obtain

$$\| (1 - U_t) f \| = 2 \left[\int_{-\infty}^{+\infty} \sin^2 \frac{\lambda t}{2} \, d(f, E(\lambda) f) \right]^{1/2} . \tag{4.6}$$

Since the function $(f, E(\lambda) f)$ is monotonically increasing with λ we can majorize the integral by replacing $\sin^2 \lambda t/2$ by the larger value $\lambda^2 t^2/4$

$$\| (1 - U_t) f \| \leqslant t \left[\int_{-\infty}^{\infty} \lambda^2 \, d(f, E(\lambda) f) \right]^{1/2} . \tag{4.7}$$

Thus if f is in the domain of H_0

$$\| (1 - U_t) f \| \leqslant t \cdot C \tag{4.8}$$

where

$$C = \| H_0 f \|$$

is some fixed positive number. If $g \in \mathfrak{H}$ is an arbitrary element then, using

the fact that the domain of H_0 is everywhere dense in $\mathfrak{H}$, we can find an $f \varepsilon D_{H_0}$ such that

$$\| g - f \| < \frac{\varepsilon}{4}$$

with this f fixed we select $t < \varepsilon/2\,C = \delta$ and obtain

$$\| (1 - U_t)\, g \| \leqslant \| (1 - U_t)\,(g - f) \| + \| (1 - U_t)\, f \|$$

$$\leqslant 2 \cdot \frac{\varepsilon}{4} + \frac{\varepsilon}{2} = \varepsilon, \text{ q. e. d.}$$

The proof is equally valid for V_t provided we replace H_0 by H.

Lemma 2. Let $W_t = V_t^* U_t$, then the function $W_t f$ is strongly continuous for all t and all $f \varepsilon \mathfrak{H}$.

Proof: Let t_0 be some fixed value of t and write

$$W_t - W_{t_0} = V_t^* (U_t - U_{t_0}) + (V_t^* - V_{t_0}^*)\, U_{t_0}$$

$$\| (W_t - W_{t_0}) f \| \leqslant \| (U_t - U_{t_0}) f \| + \| (V_t^* - V_{t_0}^*)\, g \|$$

where

$$g = U_{t_0} f .$$

Strong continuity of $W_t f$ at $t = t_0$ now follows from lemma 1, q. e. d.

Lemma 3. The function $\varphi(t) = (f, W_t\, g)$ is continuous for all t and all $f, g \varepsilon \mathfrak{H}$ and $| \varphi(t) | \leqslant \| f \| \cdot \| g \|$.

Proof: Strong continuity implies weak continuity which is the statement of the lemma 3. The boundedness follows from the fact that W_t is unitary and therefore

$$| \varphi (t) | = | (f, W_t\, g) | \leqslant \| f \| \cdot \| W_t\, g \| = \| f \| \cdot \| g \| , \tag{4.9}$$

Lemma 4. The integral

$$\Phi_\varepsilon (f, g) = \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t}\, \varphi (t)\, dt \tag{4.10}$$

where $\varphi(t) = (f, W_t\, g)$, is absolutely convergent for all $f, g \varepsilon \mathfrak{H}$ and $\varepsilon > 0$ and it is bounded:

$$| \Phi_\varepsilon (f, g) | \leqslant \| f \| \cdot \| g \| . \tag{4.11}$$

Proof: The integrand is continuous and hence integrable on any finite interval. The absolute convergence follows from the boundedness of $\varphi(t)$ (lemma 3)

$$| \Phi_\varepsilon (f, g) | \leqslant \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} | \varphi (t) | dt \leqslant \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} \| f \| \cdot \| g \| = \| f \| \cdot \| g \|, \text{ q. e}$$

It follows from the last lemma and the obvious bilinear property of $\Phi_\varepsilon(f, g)$ that it is a bilinear functional with upper bound 1. (For the definition, see Section 2). According to the theorem quoted in Section 2 there exists a linear operator Ω_ε with the property

$$\Phi_\varepsilon(f, g) = (f, \Omega_\varepsilon g) \qquad (4.12)$$
$$\| \Omega_\varepsilon \| \leqslant 1 .$$

The operator thereby defined may be written as

$$\Omega_{-\varepsilon} = \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} V_t^* U_t \, dt \qquad (\varepsilon > 0) . \qquad (4.13)$$

There is a corresponding operator defined by

$$\Omega_{+\varepsilon} = \varepsilon \int_{-\infty}^0 e^{\varepsilon t} V_t^* U_t \, dt \qquad (\varepsilon > 0) . \qquad (4.14)$$

When the distinction between the two operators is irrelevant we shall omit the $\pm$ and denote one of the two cases simply by Ω_ε.

Our next task is to study the limit $\varepsilon \to +0$ for the operators Ω_ε. The limit of a set of operators can be understood in three senses:

(1) *The limit in the norm:* Ω_ε converges in the norm to Ω ($\Omega_\varepsilon \Rightarrow \Omega$) if

$$\| \Omega_\varepsilon - \Omega \| \to 0 .$$

(2) *The strong limit:* Ω_ε converges strongly to Ω ($\Omega_\varepsilon \to \Omega$) on a subset $M \varepsilon \mathfrak{H}$ if for all $f \varepsilon M$

$$\| (\Omega_\varepsilon - \Omega) f \| \to 0 .$$

(3) *The weak limit:* Ω_ε converges weekly to Ω ($\Omega_\varepsilon \rightharpoonup \Omega$) on a subset $M \varepsilon \mathfrak{H}$ if for all $f, g \varepsilon M$

$$| (f, \Omega_\varepsilon g) - (f, \Omega g) | \to 0 .$$

One can show that (1) implies (2) and (2) implies (3), but the implications are not reversible. We shall understand our limits in the sense (2). We shall first prove the

Lemma 5. The set $L = \{f | \lim_{\varepsilon \to +0} \Omega f \text{ exists}\}$ is a closed linear manifold and $\lim_{\varepsilon \to +0} \Omega_\varepsilon$ is a bounded linear operator on M with bound $\leqslant 1$.

Proof: That L is a linear manifold follows from the fact that Ω_ε is a linear operator and that the limit of sums is the sum of the limits. That it is closed may be seen as follows:

Let $\{f_n\}$ be a sequence such that $f_n \to f$ and $f_n \varepsilon L$.

$$\| (\Omega_{\varepsilon_1} - \Omega_{\varepsilon_2}) f \| \leqslant \| (\Omega_{\varepsilon_1} - \Omega_{\varepsilon_2}) f_n \| + \| \Omega_{\varepsilon_1} (f - f_n) \| + \| \Omega_{\varepsilon_2} (f_n - f) \| . \quad (4.15)$$

We chose $\delta > 0$ arbitrary and select an n such that

$$\| f - f_n \| < \frac{\delta}{3} .$$

and a pair ε_1, ε_2 such that for the aforementioned fixed n

$$\| (\Omega_{\varepsilon_1} - \Omega_{\varepsilon_2}) f_n \| < \frac{\delta}{3} .$$

Using the boundedness of Ω_ε we find from (4.15)

$$\| (\Omega_{\varepsilon_1} - \Omega_{\varepsilon_2}) f \| < \delta .$$

Since δ was arbitrary, $\lim_{\varepsilon \to +0} \Omega_\varepsilon f - \Omega f$ exists which shows that L is closed, q.e.d. The bound of $\lim \Omega_\varepsilon$ is

$$\text{l. u. b.}_{f \varepsilon M} \frac{\| \lim_{\varepsilon \to +0} \Omega_\varepsilon f \|}{\| f \|} \leqslant \lim_{\varepsilon \to +0} \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} \| U_t^* V_t^* \| \, dt = \mathbf{1} .$$

Our next problem is to determine the extent of the space L. Lemma 5 shows that the set of elements f for which this limit exists is a subspace $L \subset \mathfrak{H}$. The operator $\Omega = \lim_{\varepsilon \to +0} \Omega_\varepsilon$ is therefore defined throughout L and is there a bounded linear operator with bound $\| \Omega \| \leqslant 1$. We could always extend the definition of Ω to a bounded operator in all of $\mathfrak{H}$ which in L agrees with Ω and which has the same bound as Ω by the following procedure. Let $L^\perp$ be the orthogonal complement of L and write for any $f \varepsilon \mathfrak{H}$ the unique decomposition

$$f = f_1 + f_2 \quad f_1 \varepsilon L , \quad f_2 \varepsilon L^\perp$$

l. c. then the assignment $f \to \Omega f_1$, is a proper extension of Ω with the same bound.

We shall see, however, that for scattering systems there is no need to do so, since for such systems the $\lim \Omega$ exists throughout all of $\mathfrak{H}$. This is an immediate consequence of the following.

Lemma 6:

If $\lim_{t \to +0} V_t^* U_t f = f_-$ exists then

$$\lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} V_t^* U_t f \, dt$$

exists also and it is equal to f_- .

Proof: Let $f_- = \lim_{t \to +\infty} V_t^* U_t f$. Then

$$\left\| \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} V_t^* U_t f \, dt - f_- \right\| \leqslant \int_0^\infty e^{-\tau} \left\| V_{\tau/\varepsilon}^* U_{\tau/\varepsilon} f - f_- \right\| d\tau .$$

The integral on the right may be separated into two parts

$$\int_0^\infty = \int_0^\sigma + \int_\sigma^\infty .$$

For the first integral we obtain the upper bound

$$\int_0^\sigma e^{-\tau} \left\| V_{\tau/\varepsilon}^* U_{\tau/\varepsilon} f - f_- \right\| d\tau \leqslant \sigma \left(\| f \| + \| f_- \| \right)$$

We then choose $\delta > 0$ and arbitrary, determine a

$$\sigma \leqslant \frac{1}{2} \frac{\delta}{\| f \| + \| f_- \|},$$

and then an ε such that for all $t > \sigma/\varepsilon$

$$\| V_t^* U_t f - f_- \| < \frac{1}{2} \delta$$

this gives

$$\int_0^\infty e^{-\tau} \left\| V_{\tau/\varepsilon}^* U_{\tau/\varepsilon} f - f_- \right\| d\tau < \frac{1}{2} \cdot \frac{\delta}{\| f \| + \| f_- \|} \left(\| f \| + \| f_- \| \right)$$

$$+ \frac{1}{2} \cdot \delta \int_0^\infty e^{-t} \, d\tau - \delta .$$

Therefore the limit

$$\lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} V_t^* U_t f$$

exists and is equal to f_-, q.e.d. Since the limit which occurs in the hypothesis of lemma 6 is assumed to exist throughout $\mathfrak{H}$ [property (I)], we have established the existence of $\lim_{\varepsilon \to +0} \Omega_\varepsilon$ throughout $\mathfrak{H}$ also. This result is equally valid for the plus and minus case. We define

$$\Omega_\pm = \lim_{\varepsilon \to +0} \Omega_{\pm \varepsilon}. \tag{4.16}$$

We now assert that the adjoint operator $\Omega_\pm^*$ can be defined similarly as

$$\Omega_\pm^* = \lim_{\varepsilon \to +0} \Omega_{\pm \varepsilon}^*. \tag{4.17}$$

This is not a trivial consequence of (4.16) as might be inferred. Indeed the existence of the limit in (4.17) follows from lemma 6 only if the limit of

the integrand exists for $t \to \pm \infty$. However for states $f \varepsilon Q = R^{\perp}$ this limit of the integrand does not exist. Hence lemma 6 cannot be applied. It is however true that (4.16) implies the existence of the weak limit in (4.17). The assertion (4.17) is meant to be the strong limit and needs a separate proof.

For states $f \varepsilon R$ the limit does exist since for such states lemma 6 is applicable. Thus we need only to show the existence of the limit in case $f \varepsilon Q - R^{\perp}$. Because of our condition (III) $f \varepsilon Q$ implies $f \varepsilon M$ where M is the subspace spanned by the proper elements of H. Let $\varphi_1, \varphi_2, \ldots$ be a complete finite or infinite orthonormal system of elements in M such that

$$f - \sum_{\alpha} c_{\alpha} \varphi_{\alpha} \qquad (\sum | c_{\alpha} |^2 < \infty).$$

We can choose the φ_{α} in such a way that

$$H \varphi_{\alpha} = \omega_{\alpha} \varphi_{\alpha},$$

where ω_{α} are the proper values of H which may not all be different from each other. We have then

$$V_t f = \sum_{\alpha} c_{\alpha} e^{i \omega_{\alpha} t} \varphi_{\alpha}$$

and

$$\Omega_{\varepsilon}^{*} f = \varepsilon \int_0^{\infty} e^{-\varepsilon t} U_t^{*} V_t f = \int_0^{\infty} \sum e^{-(\varepsilon + i \omega_{\alpha}) t} U_t^{*} c_{\alpha} \varphi_{\alpha} = i \varepsilon \sum R_{\lambda_{\alpha}} C_{\alpha} \varphi_{\alpha}.$$

In this last expression we have introduced the *Resolvent* operators associated with H_0

$$R_{\lambda_{\alpha}} = -i \int_0^{\infty} e^{(\varepsilon + i \omega_{\alpha}) t} U_t^{*} = (H_0 - \lambda_{\alpha})^{-1}. \quad \lambda_{\alpha} = \omega_{\alpha} - i \varepsilon.$$

These operators are bounded linear operators for all values of λ different from the spectrum and therefore for all $\varepsilon > 0$. We shall now prove the

Lemma 7: If H_0 has no point spectrum then $\lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon R_{\lambda_{\alpha}} \varphi_{\alpha} = 0$ for all α.

Proof: Let λ be any of the λ_{α} and $\omega = \omega_{\alpha}$ the corresponding eigenvalue and $\varphi = \varphi_{\alpha}$ the corresponding eigenfunction of H

$$\varepsilon^2 \| R_{\lambda} \varphi \|^2 = \varepsilon^2 (R_{\lambda} \varphi, R_{\lambda} \varphi) = \varepsilon^2 (\varphi, R_{\lambda}^{*} R_{\lambda} \varphi).$$

The right-hand side can be transformed by using $R_{\lambda}^{*} = R_{\lambda^*}$ and the Hilbert relation valid for any pair λ, μ:

$$R_{\mu} - R_{\lambda} = (\mu - \lambda) R_{\mu} R_{\lambda}.$$

We then obtain

$$\varepsilon^2 \| R_{\lambda} \varphi \|^2 = \frac{\varepsilon^2}{\lambda^* - \lambda} (\varphi, (R_{\lambda^*} - R_{\lambda}) \varphi).$$

We now use the spectral decomposition of R_λ and after a slight rearrangement of the integrand arrive at the expression

$$\varepsilon^2 \| R\varphi \|^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\varepsilon^2}{(\varrho-\omega)^2+\varepsilon^2}\, d\left(\varphi, E(\varrho)\varphi\right) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\varepsilon^2}{\sigma^2+\varepsilon^2}\, d\left(\varphi, E(\omega+\sigma)\varphi\right).$$

The integral has a positive integrand and a non-decreasing expression after the d-sign hence we can obtain an upper bound for it by separating the integral into three parts as follows:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} = \int_{-\infty}^{-\eta} + \int_{-\eta}^{+\eta} + \int_{+\eta}^{+\infty} \qquad (\eta > 0)\ .$$

For the second part we replace the integrand by

$$1 \geqslant \frac{\varepsilon^2}{\varrho^2+\varepsilon^2}$$

in the other two by

$$\frac{\varepsilon^2}{\eta^2+\varepsilon^2} \leqslant \frac{\varepsilon^2}{\varrho^2+\varepsilon^2}\ .$$

and then replace the sum of the first and third by an integral from $-\infty$ to $+\infty$. In this manner we obtain

$$\varepsilon^2 \| R_\lambda \varphi \|^2 \leqslant \int_{-\eta}^{+\eta} d\left(\varphi, E(\omega+\sigma)\varphi\right) + \frac{\varepsilon^2}{\eta^2+\varepsilon^2} \int_{-\infty}^{+\infty} d\left(\varphi, E(\omega+\sigma)\varphi\right).$$

$$= \left(\varphi, E(\omega+\eta)\varphi\right) - \left(\varphi, E(\omega-\eta)\varphi\right) + \frac{\varepsilon^2}{\eta^2+\varepsilon^2}.$$

In the limit $\varepsilon \to +0$ the last term vanishes, and since η was arbitrary we finally have

$$\lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon^2 \| R_\lambda \varphi \|^2 \leqslant \left(\varphi, \left[E(\omega+0) - E(\omega-0)\right]\varphi\right).$$

Since H_0 has no point spectrum the right-hand side is zero, consequently

$$\lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon \| R_\lambda \varphi \| = 0$$

or

$$\lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon\ R_\lambda \varphi = 0\ , \quad \text{q. e. d.}$$

It follows from this that

$$\lim_{\varepsilon \to +0} \Omega_\varepsilon^* f = 0 \quad \text{for} \quad f \in M.$$

We can now summarize the result of this section with the following

Theorem:

In a scattering system described by the self-adjoint energy operators H and H_0 and the corresponding unitary operators

$$V_t = e^{-iHt},\ U_t = e^{-iH_0 t}$$

the operators

$$\Omega_- = \lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} V_t^* U_t$$

and

$$\Omega_-^* = \lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} U_t^* V_t$$

exist throughout the underlying Hilbert space $\mathfrak{H}$ and they are boundet linear operators with upper bound 1. They satisfy the relations

$$\Omega_-^* \Omega_- = I\,,\quad \Omega_- \Omega_-^* = 1 - E_M\,,$$

where E_M is the projection into the subspace of bound states.

A similar result holds for the operators

$$\Omega_+ = \lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon \int_{-\infty}^0 e^{\varepsilon t} V_t^* U_t$$

$$\Omega_+^* = \lim_{\varepsilon \to +0} \varepsilon \int_{-\infty}^0 e^{\varepsilon t} U_t^* V_t.$$

We conclude this section with the remark that the particular type of averaging which is used in the integral representation of Ω_- and Ω_-^* is not essential. Indeed it is possible to obtain the same operators in the form of a limit $\Omega_- = \lim_{T \to \infty} \Omega_{-T}$, where for instance

$$\Omega_{-T} = \frac{1}{T} \int_0^T V_t^* U_t\, dt\,.$$

The existence of this limit can be proved with similar methods and it can be shown that the result is identical with the result obtained with the other process.

In this form the result appears as a generalization of the so-called mean ergodic theorem of VON NEUMANN[14]).

The theorem is proved here only under the rather restrictive assumptions of the scattering systems. It is an interesting but unsolved problem wheather this generalized theorem is true for arbitrary continuous representations of the group of real numbers. As we shall see in the next section, if it were possible to assert this, one could formulate necessary *and* sufficient conditions for a system to be a scattering system.

5. Properties of Scattering Systems

We have already shown in Section 3 that the wave operators are linear isometries with the property

$$\Omega_-^* \Omega_- = \Omega_+^* \Omega_+ = I$$

$$\Omega_- \Omega_-^* - \Omega_+ \Omega_+^* = I - E_M$$

where E_M is the projection into the subspace of proper elements of H. We shall now use the integral representation of the preceding section to derive some further properties of this operator. The first of these is contained in the

Theorem:

The operators Ω are intertwining operators for the representations U_t and V_t:

$$\Omega U_t = V_t \Omega. \tag{5.1}$$

Proof:

We shall prove the theorem for $\Omega = \Omega_-$ only, in the other case the proof is similar and need not be given.

$$\Omega_\varepsilon U_s = \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} V_t^* U_t U_s \, dt = \varepsilon \int_0^\infty e^{-\varepsilon t} V_t^* U_{t+s} \, dt$$

$$= \varepsilon V_s \int_s^\infty e^{-\varepsilon t \cdots + \varepsilon s} V_t^* U_t \, dt.$$

Hence

$$\Omega_\varepsilon U_t - V_t \Omega_\varepsilon + \varepsilon X,$$

where X is some bounded operator for all $\varepsilon \geqslant 0$. Since the limit $\varepsilon \to +0$ exists everywhere in $\mathfrak{H}$ we obtain for $\varepsilon \to +0$ Eq. (5.1), q.e.d.

By taking the adjoint operators in (5.1) we obtain the

Corollary:

The operators Ω^* satisfy

$$\Omega^* V_t = U_t \Omega^*. \tag{5.2}$$

There are several interesting consequences which follow from this theorem and its corollary.

Define the one-parameter operator family

$$\Omega(t) = U_t^* \, \Omega \, U_t . \tag{5.3}$$

Then we have the

Theorem:

The lim $\Omega(t)$ exists and we have

$$\lim_{t \to -\infty} \Omega_+(t) = \lim \Omega_-(t) = I \tag{5.4}$$

$$\lim_{t \to +\infty} \Omega_+(t) = S \tag{5.5}$$

$$\lim_{t \to -\infty} \Omega_-(t) = S^{-1}. \tag{5.6}$$

Proof:

By using (5.1) we have $\Omega(t) = U_t^* \, V_t \, \Omega$. The operator limit $U_t^* \, V_t$ exists on the range R of Ω [Eq. (3.7)] and is there equal to Ω^* for $t \to \pm\infty$. Hence

$$\lim_{t \to \pm\infty} \Omega_\pm(t) = \Omega_\pm^* \, \Omega_\pm - I$$

$$\lim_{t \to +\infty} \Omega_-(t) = \Omega_-^* \, \Omega_- = I$$

$$\lim_{t \to +\infty} \Omega_+(t) = \Omega_-^* \, \Omega_+ = S$$

$$\lim_{t \to -\infty} \Omega_-(t) = \Omega_+^* \, \Omega_- = S^{-1}.$$

This result leads to a new and equivalent definition of the scattering operator S through Eq. (5.5) or (5.6).

Since these limits exist everywhere in $\mathfrak{H}$, the operator

$$\Omega(t) \, \Omega^*(t) = 1 - E_M(t)$$

with

$$E_M(t) = U_t^* \, E_M \, U_t$$

also has limits for $t \to \pm\infty$ and because of (5.4)

$$\lim_{t \to \pm\infty} E_M(t) = 0. \tag{5.7}$$

With the results so far obtained we can now clear up a paradox which has often been discussed in the literature but which has never been completely understood. The paradox appears when one discusses the family of transformation operators

$$U(t, t_0) \equiv U_t^* \, V_t \, V_{t_0}^* \, U_{t_0}.$$

This is a two-parameter family of unitary operators, with the properties

$$U(t, t_0) = U^*(t_0, t) \tag{5.8}$$

$$U(t_0, t_0) = I\,, \tag{5.9}$$

$$U(t_1, t)\, U(t, t_0) = U(t_1, t_0) \tag{5.10}$$

Such an operator family is obtained if one 'solves' formally the Schrödinger equation in the interaction picture

$$i \frac{\partial}{\partial t} U(t, t_0) = V(t)\, U(t, t_0) \tag{5.11}$$

with the 'initial condition' (5.9). The same equation is satisfied by te operators $\Omega_+(t)$

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Omega_+(t) = V(t)\, \Omega_+(t) \tag{5.12}$$

and they satisfy the 'initial condition'

$$\Omega(-\infty) = I$$

Hence one would expect to have

$$\Omega(t) = U(t, -\infty) \tag{5.13}$$

if the implied limit on the right exists. The paradox comes from the fact that $U(t_1\, t_0)$ is unitary for *all* t_0 while $\Omega(t)$ is not, in fact

$$\Omega(t)\, \Omega^*(t) = I - E_M(t)$$

The obvious answer, which occasionally has been given, that the limit $U(t, t_0)$ for $t_0 \to -\infty$ does not exist if H has discrete eigenvalues, is incorrect. Indeed the operator $V_{t_0}^*\, U_{t_0}$ does have a limit for $t_0 \to -\infty$ on all of $\mathfrak{H}$ (condition I) and the equation (5.13) is a correct equation a sone can easily verify with the help of the relations (5.1) and (5.2). The solution of the paradox lies in the observation that the limit $U^*(t, t_0)$ for $t_0 \to -\infty$ does not exist on all of $\mathfrak{H}$, because the operator $U_{t_0}^*\, V_{t_0}$ has no limit for vectors with non-vanishing components in M. Without the existence of this limit the unitary property of $U(t, t_0)$ is destroyed for $t_0 \to -\infty$. Hence the paradox is resolved.

Among the more interesting consequences of the intertwining property of the wave operators are those which follow from the application of Schur's lemma. This lemma can be formulated as follows: Let Q be the nul-space of Ω, that is the set of vectors $f \in \mathfrak{H}$ such that $\Omega f = 0$ and R the closure of the range of Ω, and Q^*, R^* the corresponding quantities for Ω^*. These are all subspaces of $\mathfrak{H}$, and $R^\perp = Q^*$, $Q^\perp = R^*$. Schur's lemma

then says: R is an invariant subspace for V_t and R^* is an invariant subspace for U_t and the reduction of V_t to R is unitarily equivalent to the reduction of U_t to R^*:

$$^{R}V_t \simeq {}^{R^*}U_t .$$

In our particular case $R^* = Q^\perp$ is the whole space $\mathfrak{H}$ since R^* is equal to the domain of definition of Ω (condition I). Hence for scattering systems:

$$^{R}V_t \simeq U_t . \tag{5.14}$$

Since $R = Q^{*\perp} = M^\perp$ is the subspace of the continuum states of H we can express (5.14) in the following manner:

The operator U_t is unitarily equivalent to the reduction of V_t to the continuum states of H.

As a corollary we have: The continuous parts of the spectra for H and H_0 are identical.

We have here found a necessary condition for a system characterized by H and H_0 to be a scattering system. It is an interesting question whether this condition is also sufficient. It can be shown that the answer would be yes if it were possible to establish a generalized mean ergodic theorem (section 4) for unitarily equivalent representations U_t and V_t. However we have not been able to do this and the question must be left open for the time being.

We shall now establish a few additional properties of bounded linear operators Ω, with the intertwining property

$$\left.\begin{aligned} \Omega_1 U_t &= V_t \Omega_1 \\ \Omega_1^* V_t &= U_t \Omega_1^* . \end{aligned}\right\} \tag{5.15}$$

The study of such general operators will give us a third definition of the scattering operator S.

Let R_1 be the closure of the range of Ω and R_1^* the closure of the range of Ω_1^*. These are subspaces of $\mathfrak{H}$. Schur's lemma gives

$$^{R_1}V_t \simeq {}^{R_1^*}U_t . \tag{5.16}$$

Let R denote as before the common range of Ω_+ and Ω_- (property II). Then we have the

Lemma 1: The range of R_1 of Ω_1 is contained in the range R of Ω: $R_1 \subset R$.

Proof: Since $R_1^* \subset \mathfrak{H}$ the representation $^{R_1^*}U_t$ is contained in U_t. We use for this relation the notation

$$^{R_1^*}U_t \lesssim U_t .$$

By applying Schur's lemma twice we obtain the equivalence relations

$$ {}^{R_1}V_t \simeq {}^{R_1*}U_t \lesssim U_t \simeq {}^{R}V_t . $$

Hence

$$ {}^{R_1}V_t \lesssim {}^{R}V_t . $$

This means*)

$$ R_1 \mathbf{C} R , \text{ q. e. d.} $$

Lemma 2. For every intertwining operator Ω_1 of a scattering system the operator $\Omega_1(t) = U_t^* \Omega_1 U_t$ has limits at $t \to \pm \infty$.

Proof: The intertwining property yields

$$ \Omega_1 (t) = U_t^* V_t \Omega_1 $$

and the limits $U_t^* V_t f$ for $t \to \pm \infty$ exist for $f \varepsilon R$. [See eq. (3.7)]. Every f of the form $f = \Omega_1 g$, is in R_1 and therefore by lemma 1 also in R. Thus $\lim_{\to \pm \infty} \Omega_1(t) g$ exists for all $g \varepsilon \mathfrak{H}$, q.e.d.

Lemma 3. Every intertwining operator Ω_1 determines uniquely two operators X_+ and X_- such that

$$ \Omega_1 = \Omega_+ X_+ = \Omega_- X_- $$

and X_+ and X_- commute with U_t.

Proof: We prove one case only and omit the sign index. Define

$$ \Omega^* \Omega_1 = X $$

then

$$ \Omega \Omega^* \Omega_1 = \Omega X = (1 - E_{Q^*}) \Omega_1 . $$

Now $Q^* = R^\perp$, and E_{Q^*} is the projection into the subspace $R^\perp$. By lemma 1 the range R_1 is contained in R and consequently all $f \varepsilon R_1$ are orthogonal to $Q^* = R^\perp$. This yields

$$ E_{Q^*} \Omega_1 = 0 $$

and

$$ \Omega X = \Omega_1 . $$

Furthermore the intertwining property for Ω and Ω_1 implies that X commutes with U_t, q.e.d.

Definition:

An intertwining operator Ω_1 is called *complete* if $R_1 = R$.

Lemma 4. An intertwining operator Ω_1 is complete if and only if the X of lemma 3 has an inverse.

*) *Note added in proof:* This conclusion does not follow from the preceding equation. A corrected proof of this lemma will be given elsewhere.

Proof: Assume Ω_1 is complete. Denote by $\Omega^*(R_1)$ the subspace of vectors of the form $\Omega^* f$ with $f \varepsilon R_1$. The operator X maps $\mathfrak{H}$ onto the subspace $\Omega^*(R_1)$. But if Ω_1 is complete $R_1 = R$ and $\mathfrak{H}^*(R_1) = \mathfrak{H}$. Thus the range of X is $\mathfrak{H}$. We next show that $f \neq 0$ implies $g = X f \neq 0$. If $g = 0$ then $\Omega_1 f \varepsilon Q^* = R^{\pm}$, but $\Omega_1 f \varepsilon R_1 = R$, therefore $\Omega_1 f = 0$, or $f \varepsilon Q_1 = R^{*\pm}$. Now for a scattering system $R^* = \mathfrak{H}$. Hence $R^{*\pm} = R_1^{*\pm} = Q_1 = 0$ and therefore $f = 0$. Thus we have shown X has an inverse for every $f \varepsilon \mathfrak{H}$, q.e.d. Conversely if X has an inverse, we can write $\Omega = \mathfrak{H}_1 X^{-1}$. Therefore if $f \varepsilon R$ then $f = \Omega g$ for some $g \varepsilon \mathfrak{H}$ and consequently $f = \Omega_1 X^{-1} g$. This means $f \varepsilon R_1$ and $R \mathbf{C} R_1$. But by lemma 1 $R_1 \mathbf{C} R$ and we conclude $R = R_1$, q.e.d.

Corollary: If Ω_1 and Ω_2 are two complete intertwining operators then there exists a linear operator Z such

$$\Omega_1 = \Omega_2 Z \tag{5.17}$$

and

$$[Z, U_t] = 0 .$$

If

$$\Omega_1 = \Omega X_1 \text{ and } \Omega_2 = \Omega X_2$$

then

$$Z = X_2^{-1} X_1 .$$

In the case that Ω_1 and Ω_2 are the operators Ω_- and Ω_+ respectively the operator Z of the corollary is simply the S-operator. The commuting property of S with U_t is the mathematical expression for the law of the conservation of energy.

Theorem: Let U_t and V_t be the unitary representations of the additive group of real numbers associated with a scattering system and Ω_1 any complete intertwining operator, then the limits of the operator family $\Omega_1(t) = U_t^* \Omega_1 U_t$ exist for $t \to \pm \infty$ and

$$\Omega_1 (+ \infty) = S \Omega_1 (- \infty) \tag{5.18}$$

where S is the scattering operator:

Proof: Existence of the limits is assured by lemma 2. According to lemma 3 there exists a unique bounded linear operator X, such that

$$\Omega_1 = \Omega_+ X .$$

Since X commutes with U_t, we also have

$$\Omega_1 (t) = \Omega_+ (t) X$$

and consequently

$$\Omega_1 (- \infty) = \Omega_+ (- \infty) X = X$$
$$\Omega_1 (+ \infty) = \Omega_+ (+ \infty) X = S X .$$

Combining the last two equations, we find

$$\Omega_1 (+\infty) = S\,\Omega_1 (-\infty)$$

which proves the theorem.

The content of this theorem can be used for a new definition of the scattering operator S: Given U_t, V_t of a scattering system, find a complete intertwining operator Ω_1 and then define S by (5.18).

6. The Scattering Cross Section

In the preceding sections we have established that the so-called 'simple scattering systems' characterized by the properties (I), (II), and (III) always admit a unitary scattering operator. It is not immediately obvious how this operator is related to the physically observable quantities in a scattering process. These quantities are always expressed in terms of the *scattering cross-section*. Hence our problem is to show how the scattering cross section is obtained from the unitary scattering operator.

The formal procedure for calculating the scattering cross section is well known*). We shall derive this result here from a mathematically more satisfactory point of view. All derivations of the cross section which have been given either make use of improper function or artificial devices such as normalized wave functions in a box which are entirely foreign to the physical problem on hand. It may, therefore, be not superfluous to show how the cross section can be obtained without any artificial devices of this nature. In the derivation here presented we shall at all stages stay very close to the actual physical situation.

Before we do this we must first examine an assumption which is always made as a matter of course viz. that every S-operator can be represented as an S-matrix. It is well-known that the association of an integral operator with a unitary operator is not always possible. The simplest example is the unit operator. Hence we must first examine in what sense it is possible to associate an integral operator with the S-operator.

In order to make the discussion specific we shall examine the simplest case, viz. the scattering of a single particle with no internal degrees of freedom. The interaction is then necessarily an external one, such that the total momentum of the particle is changed in the scattering process. The case of the scattering of two particles is easily reduced to this case, for instance, by separating the center of mass motion from that of the relative motion. It is equally simple to include internal degrees of freedom.

*) See for instance reference 1 esp. chapt. 8.

In order to study the matrix-representation of the S-operator we shall introduce a relaziation of the Hilbert space by the family of L^2-functions $f(\boldsymbol{k})$ over the infinite domain of the three-dimensional Euclidean space. It is well-known that in such a realization the three-momentum operators p_i can be written as multiplication with k_i, and that this realization is essentially (that is apart from unitary equivalence) unique[15]).

In this realization the operator H_0 is given by

$$H_0 f(\boldsymbol{k}) = \omega(k) f(\boldsymbol{k}) \tag{6.2}$$

where

$$\omega(k) \quad \text{either} \quad \frac{1}{2m} k^2 \quad \text{or} \quad \sqrt{k^2 + m^2}.$$

In any case $\omega(k)$ is a monotonically increasing function of k, such that

$$\omega(k) < \omega(k') \quad \text{for} \quad k < k'$$

If S has a representation as an integral operator then there exists a function $S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}')$ of the six variables $\boldsymbol{k}$ and $\boldsymbol{k}'$ such that

$$S f(\boldsymbol{k}) = \int S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}') f(\boldsymbol{k}') \, d^3 k' . \tag{6.3}$$

It is easy to show that for the S-operators such a representation can never exist. This is a simple consequence of the fact that S commutes with H_0, that is, the equation

$$S H_0 f = H_0 S f \tag{6.4}$$

holds for all $f \varepsilon D_{H_0}$. When this equation is expressed in terms of the functions $f(\boldsymbol{k})$ there results

$$\int S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}') \left(\omega(k) - \omega(k')\right) f(\boldsymbol{k}') \, d^3 k' = 0 . \tag{6.5}$$

This equation holds for all $f(\boldsymbol{k})$ such that

$$\int \omega^2(k) \mid f(\boldsymbol{k}) \mid^2 d^3 k < \infty$$

The set of vectors with this property is everywhere dense and from this one concludes by a well-known reasoning that almost everywhere

$$S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}') \left(\omega(k) - \omega(k')\right) = 0 \tag{6.6}$$

and also

$$S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}') = 0 \quad \text{for} \quad k \neq k' . \tag{6.7}$$

Since the surface $\omega(k) = \text{const.}$ has measure zero with respect to the volume integration we find

$$\int S^*(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}'') \, S(\boldsymbol{k}', \boldsymbol{k}'') \, d^3 k'' = 0$$

which is incompatible with the unitary property of S. Hence the representation (6.3) does not exist.

We have here of course merely expressed the well-known fact that 'the S-matrix must contain a δ-function with respect to the energy'.

Even though a matrix representation of S is seen not to exist, it is possible that there might exist a matrix representation in the following sense: Introduce spherical polarcoordinates in $\boldsymbol{k}$-space and denote a point on the unit sphere with α and the corresponding (two-dimensional) surface element with $d\alpha$. Writing $f(k, \alpha)$ for the functions in L^2 we may find a function $R_{\alpha\alpha'}(k)$ of the pairs α, α' such that

$$S f(k, \alpha) = f(k, \alpha) + \int R_{\alpha\alpha'}, (k) f(k, \alpha') d\alpha' . \tag{6.8}$$

An interpretation of scattering in terms of a differential cross section is only possible in terms of the matrix elements $R_{\alpha\alpha'}$. Hence the existence of such a matrix is a necessary requirement for this interpretation. We shall, therefore, make the assumption that (6.8) exists and proceed to show how the cross section is defined in terms of the matrix elements $R_{\alpha\alpha'}$.

We simplify the notation by suppressing the parameter k on which all quantities depend. In the physical interpretation of quantum mechanics

$$P(\alpha) \equiv \int\int R^*_{\alpha\alpha'}, R_{\alpha\alpha''} f^*(\alpha') f(\alpha'') d\alpha' d\alpha'' \tag{6.9}$$

represents the probability density for the observation of a scattered particle with the propagation direction α. In this form the result is not yet susceptible to a physical interpretation. The reason is, that scattering experiments are not performed with a single scatterer but with a target which contains a large number of independent scatterers at different locations in space. What is observed then is not the probability density (6.9) but an average of this quantity over a large number of scatterers in the target.

There are two conditions which a good target should satisfy. The first is that it must not be too thick so that multiple scattering inside the target is negligeable. The second is, that the scatterers in the target should be arranged in an essentially random manner so that there are no phase relations of the scattered waves arriving from different scattering centers. These two conditions allow us to calculate the average value of the probability $P(\alpha)$ by summing the contribution of the single scattering probability (6.9) from each individual scatterer in the target.

The S-operator $S(\boldsymbol{a})$ associated with a scatterer at the position $\boldsymbol{a}$ is obtained from the operator S of a scatterer at the origin by a similarity transformation

$$S(\boldsymbol{a}) = \Pi(\boldsymbol{a}) S \Pi^*(\boldsymbol{a}) \tag{6.10}$$

with the unitary displacement operator $\Pi(\boldsymbol{a})$ defined by

$$\Pi(\boldsymbol{a}) f(\boldsymbol{k}) = e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{a}} f(\boldsymbol{k}) \tag{6.11}$$

From this we find for the corresponding matrix elements

$$R_{\alpha\alpha'}(\boldsymbol{a}) = e^{i\,\boldsymbol{a}\cdot(\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k})}\, R_{\alpha\alpha'} \tag{6.12}$$

with

$$k = k' .$$

We shall now make the assumption that the number of scatterers in the target is so large that one may, with sufficient accuracy, calculate the average scattering probability by replacing the sum over the individual scatterers by an integral. When this is done we arrive at the following expression for the average probability density $\overline{P}(\alpha)$

$$P(\alpha) = n\int d^3a \int\int d\alpha'\, d\alpha''\, e^{i(\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k}'')\cdot\boldsymbol{a}}\, R^*_{\alpha\alpha'}\, R_{\alpha\alpha''}\, f^*(\alpha')\, f(\alpha'') . \tag{6.13}$$
$$(k' = k'' = k)$$

where $n\, d^3a$ is the (constant) number of scatterers inside the volume element d^3a and the integral d^3a is to be carried out over the entire target volume.

In order to evaluate this integral we adapt the coordinate system to the geometrical configuration of the target. Let the 3-component of $\boldsymbol{a}$ be normal to the target area and the 1- and 2-components in the target area which is assumed to extend in all directions without limit. The integral over a_1 and a_2 can then be evaluated with the Fourier integral theorem. We keep α'' fixed, define $\boldsymbol{g} = \boldsymbol{k}' - \boldsymbol{k}''$, introduce spherical coordinates ϑ, φ such that

$$d\alpha' = \sin\vartheta\, d\vartheta\, d\varphi .$$

If the polar axis is in the direction of g_3 we have

$$g_1 = k \sin\vartheta \cos\varphi$$

$$g_2 = k \sin\vartheta \sin\varphi$$

$$g_3 = k(\cos\vartheta - 1)$$

so that

$$d\alpha' = \frac{\partial(\vartheta, \varphi)}{\partial(g_1, g_2)}\, dg_1\, dg_2 = \frac{dg_1\, dg_2}{k\sqrt{k^2 - g_1^2 - g_2^2}} .$$

The resulting integral is of the form

$$\int da_1\, da_2 \int e^{i(g_1 a_1 + g_2 a_2)}\, F(g_1\, g_2)\, dg_1\, dg_2 = (2\pi)^2\, F(0, 0) , \tag{6.14}$$

where

$$F(g_1\, g_2) = n\, \frac{1}{k\sqrt{k^2 - g_1^2 - g_2^2}}\, R^*_{\alpha\alpha'}\, R_{\alpha\alpha''}\, f^*(\alpha')\, f(\alpha'') .$$

The remaining integration over a_3 is now trivial, since the integrand which

is left after the substitution (6.14) is independent of a_3. Denoting by d the thickness of the target we arrive at the final result:

$$\overline{P}(\alpha) = (2\pi)^2 n d \int d\alpha' \frac{1}{k^2} | R_{\alpha\alpha'} |^2 | f(\alpha') |^2 . \tag{6.15}$$

The quantity

$$\sigma = \frac{(2\pi)^2}{k^2} | R_{\alpha\alpha'} |^2 , \tag{6.16}$$

which has the dimension of an area, is the differential scattering cross section for the scattering of a particle with direction α' into a particle with direction α.

It is easily seen that formulae (6.15) and (6.16) correspond exactly to the usual description of the scattering process in terms of the cross section. Indeed, if the direction of the incident particles is equal to α_0 to a very high degree of approximation then this situation would be described by a wave packet $f(\alpha')$ with a sharply peaked probability amplitude around $\alpha' = \alpha_0$. In this case the probability density for scattering into the direction α would be described with a high degree of accuracy

$$\overline{P}(\alpha) = n \cdot d \cdot \sigma . \tag{6.17}$$

This is the usual expression of this quantity in terms of the cross section σ.

7. Concluding remarks

In the preceding sections we have given three equivalent definitions of the scattering operator and we have proved the existence of this operator for simple scattering systems as well as its unitary property.

With this result we have succeeded to place the theory of scattering processes on a rigorous mathematical foundation. The results obtained here, as well as the new methods introduced, may be the incentive for a number of further investigations. Foremost among these is the general scattering formalism for the multichannel processes and the investigation of the scattering operator in field theories.

The author has received considerable help from Professor H. A. Dye of the University of Southern California who pointed out to him the connection with the Mean Ergodic Theorem, and from Professor G. W. Mackey of Harvard University for an interesting suggestion and a counter example. Several conversations with my colleagues, Professor M. Smiley and Professor S. K. Berberian of this University have been very helpful. To all of them I wish to express here my thanks.

References

[1]) J. M. Jauch and F. Rohrlich, 'Theory of Photons and Electrons', Addison-Wesley Publishing Co. (1955), esp. Chap. 7.

[2]) T. Imamura, Progr. of Theor. Phys. *18*, 51 (1957)

[3]) H. E. Moses, Nuovo Cim. *1*, 103 (1955).

[4]) F. Coester, M. Hammermesh, and K. Tanaka, Phys. Rev. *96*, 1142 (1954).

[5]) M. N. Hack, Phys. Rev. *96*, 196 (1954)

[6]) F. J. Belinfante and C. Moller, Kgl. Danske Vid. Selskab, Mat.-fys. Medd. *28*, No. 6 (1953)

[7]) S. T. Ma, Phys. Rev. *87*, 652 (1952).

[8]) M. Gell-Mann and M. Goldberger, Phys. Rev. *91*, 398 (1953).

[9]) S. Fubini, Atti, Acad. Naz. Lincei *12*, 298 (1952).

[10]) H. Ekstein, Phys. Rev. *101*, 880 (1956); *94*, 1063 (1954).
A review of the 'formal' theory of scattering is found in B. S. de Witt, 'The Operator Formalism in Quantum Perturbation Theory', University of California, Radiation Laboratory. In this reference is also a complete list of the earlier publications on the scattering operator.

[11]) J. von Heumann, «Mathematische Grundlagen der Quantenmechanik», J. Springer, Berlin, 1932.

[12]) E. L. Hill, Phys. Rev. *104*, 1173 (1956); *107*, 877 (1957).

[13]) The material in this section can be found in a large number of references. For the the convenience of the reader we mention only the following which we have found most useful. – J. von Neumann, «Mathematische Grundlagen der Quantenmechanik», J. Springer, Berlin 1932. – F. Riesz and B. Sz.-Nagy, 'Functional Analysis', F. Ungar Publ. Co., New York 1955. – M. H. Stone, 'Linear Transformations in Hilbert Space», Am. Math. Soc. Coll. Publ. XV, New York 1932. – N. I. Achieser and I. M. Glasmann, 'Theorie der linearen Operatoren im Hilbert Raum', Akademie Verlag, Berlin 1954.

[14]) J. von Neumann, Proc. Nat. Acad. *18*, 70 (1932).

[15]) J, von Neumann, Math. Ann. *104*, 570 (1931).

Quantité d'information, et systèmes physiques

par **L. Berger,** Lausanne

(15 XII 1957)

The purpose of this publication is to show how the notion of 'quantity of information' can be introduced, to describe statistical correlations between physical systems.

This problem is treated in the classical case (systems which are caracterized by c-numbers). Then it is treated in the quantum case (systems which are caracterized by q-numbers). In both cases, the time evolution of information is investigated, for an isolated system. A conservation equation for information is derived.

Before that, the definition and mathematical properties of quantity of information are briefly given. A definition is chosen, which explicitly shows two elements on which information depends always; these elements are: the system which contains information ('document'), and the system described by the information ('subject').

1. Introduction

Le but de cette publication est de montrer comment il convient d'introduire la notion de «quantité d'information», pour décrire les corrélations statistiques entre des systèmes physiques.

Ce problème est traité dans le cas classique (systèmes caractérisés par des nombres c). Puis il est traité dans le cas quantique (systèmes caractérisés par des nombres q). Dans les deux cas, l'évolution temporelle de l'information est examinée, lorsque le système est isolé. On trouve que l'information se conserve.

Auparavant, la définition et les propriétés mathématiques de la quantité d'information sont rappelées rapidement. La définition qui est choisie explicite deux éléments dont dépend toujours l'information; ces deux éléments sont: le système qui contient l'information («document»), et le système décrit par l'information («sujet»).

2. Définition mathématique de la quantité d'information

Soit tout d'abord une variable continue et réelle x:

$$-\infty < x < +\infty$$

Soit une densité de probabilité $p(x)$ définie sur la variable x:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} p(x)\, dx = 1$$

Appelons *entropie de la variable* x le nombre Sx, s'il existe:

$$Sx = -\int_{-\infty}^{+\infty} p(x) \log p(x)\, dx \tag{2.1}$$

Soient maintenant 2 variables continues et réelles x et y:

$$-\infty < x < +\infty \qquad -\infty < y < +\infty$$

Soit une densité de probabilité combinée $p(x, y)$ définie sur l'espace des paires (x, y):

$$\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} p(x, y)\, dx\, dy = 1$$

Appelons *entropie du système de variables* x, y le nombre Sxy, s'il existe:

$$Sxy = -\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} p(x, y) \log p(x, y)\, dx\, dy \tag{2.2}$$

Les variables x et y ont chacune une densité de probabilité projetée:

$$p(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} p(x, y)\, dy \qquad p(y) = \int_{-\infty}^{+\infty} p(x, y)\, dx$$

Selon (2.1.), chacune de ces deux variables a donc aussi une entropie (si les intégrales existent):

$$Sx = -\int_{-\infty}^{+\infty} p(x) \log p(x)\, dx \qquad Sy = -\int_{-\infty}^{+\infty} p(y) \log p(y)\, dy \tag{2.3}$$

Appelons alors *information de la variable* y *sur la variable* x la quantité $I_x y$:

$$I_x y = Sx + Sy - Sxy \tag{2.4}$$

Nous appellerons y le *document*, et x le *sujet* de l'information. $I_x y$ mesure les corrélations statistiques entre x et y*).

Remarquons que l'expression (2.4) est analogue à celle qui figure dans le théorème fondamental de SHANNON[1]) sous le nom de «rate of transmission of information». Cependant, lorsque SHANNON et d'autres auteurs discutent les propriétés mathématiques générales de l'information, ils le font[2])[4])[6]) sur une expression de la forme de (2.1.); le signe en est d'ailleurs différent chez SHANNON d'une part, et chez WIENER et BRILLOUIN d'autre part.

Employée comme mesure de l'information, l'expression (2.1.) présente certains défauts, souvent signalés dans la littérature[3])[5]). Certains au moins de ces défauts semblent ne pas affecter l'expression (2.4.); cela est dû au fait que (2.4.) précise et met en évidence les deux éléments dont dépend toujours l'information, à savoir: le document et le sujet.

Il semble préférable à l'auteur de réserver le nom de quantité d'information à des expressions de la forme de (2.4.).

3. Propriétés mathématiques de la quantité d'information

Enonçons brièvement les propriétés générales de l'expression (2.4.). La plupart d'entre elles ont d'importantes conséquences dans les applications à la Physique.

Ces propriétés découlent le plus souvent de propriétés de l'entropie (2.1.), démontrées par SHANNON ou BRILLOUIN[2])[4]).

Propriété a: $I_x y = I_y x$.

Propriété b: $0 \leqslant I_x y \leqslant +\infty$.

Propriété c: Si $p(x, y) = p(x)p(y)$ (x et y statistiquement indépendantes), alors: $I_x y = 0$.

Propriété d: Si la variable z est une fonction univoque $z = z(y)$ de la variable y, alors: $I_x z \leqslant I_x y$.

Propriété e: Si la variable z est une fonction biunivoque $z = z(y)$ de la variable y, alors: $I_x z = I_x y$.

Par une généralisation évidente, il est possible de définir une information lorsque le document (ou le sujet, ou les deux) est constitué par une paire de variables. Par exemple:

$$I_x y z = S x + S y z - S x y z \tag{3.1}$$

Dans (3.1.), $Sxyz$ est supposé défini par généralisation naturelle des expressions (2.1.) et (2.2).

*) Bien que la définition (2.4) de l'information soit symétrique en x et y, l'auteur préfère, pour diverses raisons, utiliser la notation dissymétrique $I_x y$.

On a alors les propriétés suivantes:
Propriété f: $I_x yz = I_x zy$.
Propriété g: $I_x yz \geqslant I_x y$. $\quad I_x yz \geqslant I_x z$.
Propriété h: $I_x yy = I_x y$.
Propriété i: Si la variable z est une fonction univoque $z = z(y)$ de la variable y, alors: $I_x yz = I_x y$.
Définition j: On a en général: $I_x yz \leqslant I_x y + I_x z$.
Introduisons donc *l'information d'interaction* $J_x yz$ des documents y et z sur le sujet x, définie par:

$$I_x yz = I_x y + I_x z + J_x yz \tag{3.2}$$

Propriété k: Si $p(x,u,y,z) = p(x,y)\,p(u,z)$ (paire (x,y) statistiquement indépendante de la paire (u,z)), alors: $I_{xu} yz = I_x y + I_u z$.
Donc, dans ce cas: $J_{xu} yz = 0$.

4. La quantité d'information dans les systèmes physiques classiques. Evolution temporelle

Soit un système physique classique a. Caractérisons son état à l'instant t à l'aide de variables canoniques $p_1, q_1, \ldots p_n, q_n$ (nombres c).
Introduisons aussi une variable (ou système de variables) quelconque x (nombre c). Cette variable est supposée ne pas dépendre du temps. Elle décrit, par exemple, un certain événement qui s'est passé à un temps t_0 fixé.
Supposons qu'une densité de probabilité $p(p_1, q_1, \ldots p_n, q_n; x)$ soit définie sur l'espace des paires $(a; x) = (p_1, q_1, \ldots p_n, q_n; x)$.
Il est alors possible de définir *l'information du système physique a (document) sur le sujet x;* il suffit d'utiliser le processus qui, dans la section 2 du présent article, mène de l'expression (2.2.) à l'expression (2.4.). Cette information est:

$$I_x a = I_x p_1 q_1 \cdots p_n q_n = S x + S p_1 q_1 \cdots p_n q_n - S x p_1 q_1 \cdots p_n q_n \tag{4.1}$$

Supposons le système a isolé. Examinons l'évolution temporelle de l'information $I_x a$.
A cause de la constance de la variable x, et à cause du théorème de Liouville de la conservation de la densité en phase, il est évident que chacune des entropies qui composent l'expression (4.1.) reste constante au cours du temps*). L'information (4.1.) est donc elle-même constante au cours du temps:

$$\frac{d}{dt} I_x a = 0 \tag{4.2}$$

*) Il n'est peut-être pas inutile de remarquer que ces entropies, étant définies à partir de probabilités à «grain fin», ne sont pas celles de la thermodynamique.

Le résultat (4.2.) précise l'idée commune et vague selon laquelle un système physique ne peut acquérir de l'information sans communication, sans interaction physique, avec l'extérieur.

Il n'est d'ailleurs pas absolument nécessaire, pour que (4.2.) ait lieu, que l'état du système isolé a soit caractérisé par des variables canoniques. Considérons en effet la condition suivante:

«Principe du déterminisme réversible»: L'état du système à un temps quelconque t_1 détermine, d'une manière univoque, à la fois l'évolution passée et l'évolution future du système.

Si les variables décrivant l'état du système isolé a sont telles que cette condition soit réalisée, alors (4.2.) est valable. La raison en est la propriété e) de l'information (voir la section 3 du présent article). Mais les entropies qui composent l'information (4.1.) ne se conservent en général plus.

Remarquons finalement que le résultat (4.2.) n'exclut pas la possibilité d'une *dissipation* de l'information. Dans certains systèmes l'on peut classer les variables en variables «visibles» et en variables «cachées»; et il est concevable que l'information, comme l'énergie, ait une tendance à se porter des variables visibles sur les variables cachées du système. La formule (4.2.) ne peut rien nous apprendre au sujet d'une telle dissipation de l'information; en effet toutes les variables du système isolé a interviennent dans (4.2.), et y sont traitées sur le même pied.

5. La quantité d'information dans les systèmes physiques quantiques. Evolution temporelle

Soit un système physique quantique a.

A chaque ensemble maximum O de grandeurs physiques simultanément mesurables de a est associé à l'instant t un ensemble complet[7]) $\boldsymbol{O}$ d'opérateurs commutables d'un espace de HILBERT.

Introduisons également une variable quelconque $\boldsymbol{X}$ (nombre q, opérateur sur un espace de HILBERT). Cette variable est supposée ne pas dépendre du temps; elle décrit, par exemple, un certain événement physique x qui s'est passé une fois, à un temps t_0 fixé.

La paire $(\boldsymbol{O}; \boldsymbol{X})$ est un ensemble complet d'opérateurs commutables pour le système combiné $(a; x)$.

Supposons qu'un opérateur de densité[8])[10]) $\varrho^{a\,x}$ soit défini sur l'espace de HILBERT combiné (espace produit) de a et de x. Il définit les propriétés statistiques du système combiné $(a; x)$, et est donc le correspondant quantique d'une densité de probabilité.

On a également des opérateurs de densité ϱ^a et ϱ^x projetés sur l'espace de HILBERT de a et sur celui de x. Ils sont naturellement obtenus par formation de «trace»[11])[12]) à partir de $\varrho^{a\,x}$.

L'ensemble complet ($\boldsymbol{O}$; $\boldsymbol{X}$) d'opérateurs commutables de (a; x) définit une représentation orthogonale de (a; x).

L'opérateur de densité $\boldsymbol{\varrho}^{a\,x}$ y est représenté par une matrice $\varrho^{a\,x}_{ij\,kl}$, les opérateurs projetés $\boldsymbol{\varrho}^{a}$ et $\boldsymbol{\varrho}^{x}$ par des matrices ϱ^{a}_{ij} et ϱ^{x}_{kl}.

Il est alors possible de définir l'entropie[9])[13]) du système combiné (a; x):

$$S\,a\,x = -\sum_{i\,k} \varrho^{a\;x}_{ii\;kk} \log \varrho^{a\;x}_{ii\;kk} \tag{5.1}$$

Et aussi les entropies Sa et Sx des systèmes partiels a et x:

$$S\,a = -\sum_{i} \varrho^{a}_{ii} \log \varrho^{a}_{ii} \qquad S\,x = -\sum_{k} \varrho^{x}_{kk} \log \varrho^{x}_{kk}$$

Les valeurs de toutes ces entropies dépendent de la représentation orthogonale choisie, donc de O.

Par analogie à (2.4) ou à (4.1), on définit l'information du système quantique a sur l'événement (quantique)x:

$$I_x\,a = S\,x + S\,a - S\,a\,x \tag{5.2}$$

Il est maintenant essentiel de se rappeler que la valeur de l'information (5.2) dépend de l'ensemble maximum O de grandeurs physiques simultanément mesurables, choisi pour définir la représentation du système a:

$$I_x a = I_x a\,(0) \tag{5.3}$$

Nous appelons la relation fonctionnelle (5.3) la *fonction d'information* du système quantique a sur l'événement (quantique) x.

On peut dire que (5.3) représente l'information sur la variable $\boldsymbol{X}$ (décrivant l'événement x), qui est fournie par la mesure de l'ensemble maximum O de grandeurs physiques simultanément mesurables du système a. Comme on ne peut mesurer simultanément plusieurs ensembles maximums O, la valeur de l'information doit être indiquée pour chaque O; il est donc normal que l'information soit représentée dans le cas quantique par une *relation fonctionnelle*, et non par un simple nombre.

Il est facile de vérifier que l'information (5.3) jouit, relativement aux arguments x et a, de toutes les propriétés mathématiques générales qui sont énoncées à la section 3*).

Il est également facile de voir que, dans la limite classique: $\lim h = O$, la valeur de l'information (5.3) devient indépendante de O, et est donnée par (4.1).

*) Il convient cependant, là où des densités de probabilité figurent dans les énoncés, de les remplacer par des matrices de densité.

Supposons le système a isolé. Examinons l'évolution temporelle de l'information $I_x a$.

Dans la forme de HEISENBERG des équations du mouvement («HEISENBERG picture»), les opérateurs des grandeurs physiques du système isolé a évoluent selon des équations où figure un hamiltonien $\boldsymbol{H}(a)$ qui ne contient pas explicitement le temps. Par contre l'opérateur de densité $\boldsymbol{\varrho}^{ax}$ reste constant.

Il est facile de voir que, pour un O donné, l'information (5.3) varie en général au cours du temps. Le seul cas où l'information (5.3) se conserverait serait celui où les opérateurs qui constituent $\boldsymbol{O}$ seraient tous des constantes du mouvement.

Pour nous sortir de cette difficulté, introduisons alors à chaque instant t un nouvel ensemble maximum $O'(t)$ de grandeurs physiques simultanément mesurables de a, auquel est associé un ensemble complet $\boldsymbol{O}'$ d'opérateurs commutables. Cet ensemble de grandeurs physiques $O'(t)$ est défini à partir de O par la relation suivante entre les opérateurs correspondants:

$$\boldsymbol{O}' = e^{-\frac{i}{\hbar}\boldsymbol{H}(a)t} \quad \boldsymbol{O}\, e^{\frac{i}{\hbar}\boldsymbol{H}(a)t} \tag{5.4}$$

On obtient alors facilement:

$$\frac{d}{dt} I_x a\big(O'(t)\big) = O \tag{5.5}$$

On peut exprimer le résultat (5.5) en disant que l'information, donnée au temps $t = O$ par la mesure de l'ensemble maximum O de grandeurs physiques de a, n'est plus donnée à un autre temps par la mesure de cet ensemble, mais bien par celle d'une autre ensemble maximum O' *).

Comme dans le cas classique (4.2), le résultat (5.5) précise l'idée commune et vague selon laquelle un système physique ne peut acquérir de l'information sans communication, sans interaction physique avec l'extérieur. Mais, pour s'apercevoir de cette conservation dans le cas quantique, il est nécessaire à des temps différents de mesurer des grandeurs physiques différentes du système. Si l'on mesure à des temps différents toujours le même ensemble maximum de grandeurs physiques (par exemple toujours les positions des constituants du système), on constate au contraire une variation apparente de l'information du système. Ce phénomène disparaît dans la limite classique.

*) Il est essentiel de bien voir que ce sont des ensembles de grandeurs physiques, et non les ensembles d'opérateurs correspondants, qui figurent comme arguments dans (5·3) et (5.5). Une grandeur physique est définie en indiquant les techniques expérimentales nécessaires à sa mesure. Il lui correspond au cours du temps différents opérateurs.

Pas plus que dans le cas classique (4.2), l'équation de conservation (5.5) n'exclut une dissipation possible de l'information.

Je tiens finalement à remercier le professeur D. Rivier, ainsi que MM. C. Piron et J. Rufenacht, pour les fructueuses discussions que j'ai eues avec eux sur le sujet de ce travail.

Lausanne, Laboratoire de Physique de l'Université.

Bibliographie

[1]) C. Shannon: The Mathematical Theory of Communication (The University of Illinois Press, 1949), p. 64.
[2]) C. Shannon: The Mathematical Theory of Communication (The University of Illinois Press, 1949), p. 18 à 22.
[3]) C. Shannon: The Mathematical Theory of Communication (The University of Illinois Press, 1949), p. 99, et p. 114 à 117.
[4]) L. Brillouin: Science and Information Theory (Academic Press, 1956), p. 11 à 20.
[5]) L. Brillouin: Science and Information Theory (Academic Press, 1956), p. 9 et 10, et p. 294.
[6]) N. Wiener: Cybernetics, p. 76 à 79 (Wiley, Hermann & Cie., 1948).
[7]) P. A. M. Dirac: The Principles of Quantum Mechanics (Oxford, 1947), p. 57.
[8]) R. C. Tolman: The Principles of Statistical Mechanics (Oxford, 1938), p. 327.
[9]) R. C. Tolman: The Principles of Statistical Mechnics (Oxford, 1938), p. 461, 468, 469.
[10]) J. von Neumann: Mathematical Foundations of Quantum Mechanics (Princeton, 1955), p. 315.
[11]) J. von Neumann: Mathematical Foundations of Quantum Mechanics (Princeton, 1955), p. 424 et 425.
[12]) W. M. Elsasser, Phys. Rev. **52**, 997 (1937).
[13]) O. Klein, Z. Physik **72**, 767 et suivantes (1931).

Présentation d'une méthode d'étude d'un asservissement de position commandé par un commutateur

par **J. Rüfenacht** (Laboratoires SAPE, Lausanne)

(27. I. 1958)

Exposé d'une méthode graphique permettant de déterminer le comportement global de l'asservissement, soumis à une entrée en saut de Heaviside, en tenant compte de la non-linéarité des éléments constituant l'asservissement et d'un bref temps de commutation.

De tels asservissements sont fréquemment utilisés pour de petits régulateurs, leur prix de revient étant assez modique. L'Analyse mathématique se prête mal à l'étude de ces servos car leur comportement est essentiellement non-linéaire. Le but de cet article est de montrer, dans un cas simple, l'utilité de l'application de la méthode «topologique» à cette étude.

Le schéma de principe du système est donné figure 1.

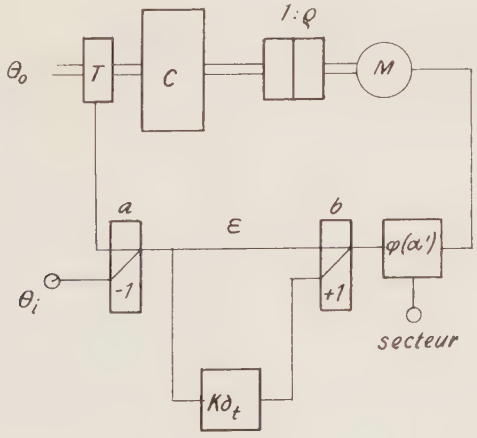


Fig. 1

Θ_i position angulaire d'entrée (électr.) $\quad \varepsilon = a(\Theta_0 - \Theta_i) \quad \alpha = b'_i\varepsilon + Kb\dot{\varepsilon}$

Θ_0 position angulaire de sortie (méc.) $\quad T$ = Trad. électr.-méc. ln.

C = Charge méc. $\quad M$ = Moteur $\quad \varphi(\alpha')$ = Commutateur

Désignons par: I L'inertie totale ramenée sur l'axe Θ_0. $f(\dot{\Theta}_0)$ Le coefficient de frottement visqueux total ramené sur l'axe Θ_0. μ Le coefficient de frottement sec total ramené sur l'axe Θ_0.

La fonction de commutation est représentée en figure 2.

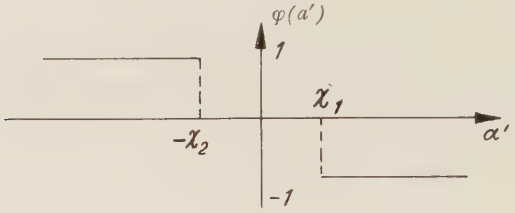


Fig. 2

Si dans l'intervalle $-\chi_2 < \alpha' < \chi_1$ un des enroulements du moteur est court-circuité et de ce fait introduit un frottement visqueux supplémentaire, celui-ci sera représenté par l'expression $f_s \dot{\Theta}_0 \psi(\alpha') \psi(\alpha')$ étant décrite par la figure 3.

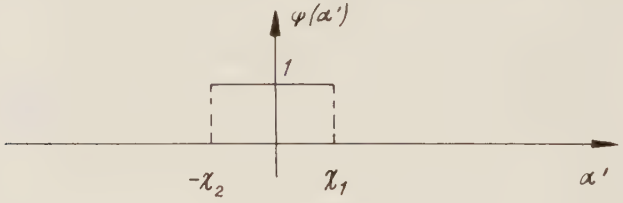


Fig. 3

Le couple moteur est une fonction de la vitesse angulaire ω. Pour un moteur asynchrone, par exemple, nous mesurons une fonction de l'allure de la figure 4.

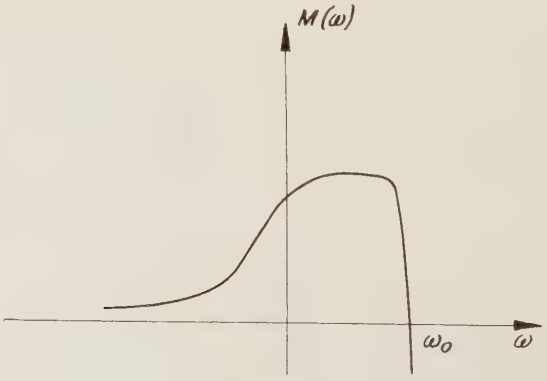


Fig. 4

ω_0 étant la vitesse de synchronisme.

Nous avons: $\omega = \varrho \dot{\Theta}_0 \varphi(\alpha')$; $\varphi \neq 0$. Le couple moteur ramené à l'axe Θ_0 s'écrira donc:

$$C_m = \varrho M \left(\varrho \dot{\Theta}_0 \varphi(\alpha')\right) \cdot \varphi(\alpha')$$

Finalement, le comportement du servo sera décrit par l'équation différentielle:

$$I \ddot{\Theta}_0 + f(\dot{\Theta}_0)\, \dot{\Theta}_0 + \mu \operatorname{sgn} \dot{\Theta}_0 = \varrho M(\varrho \dot{\Theta}_0 \varphi(\alpha'))\, \varphi(\alpha') - f_s \psi(\alpha')\, \dot{\Theta}_0 \quad (1)$$

La commutation aura lieu un temps τ après que α aura pris l'une des valeurs $-\chi_2, \chi_1$. Nous poserons donc:

$$\alpha' = \alpha + a\, b\, \tau\, \dot{\Theta}_0 \quad (2)$$

τ étant très petit vis à vis de la «période» du système.

Pour des conditions initiales quelconques, imposons $\Theta_i(t) = \Theta_i\, y(t)$ avec

$$y(t) = \begin{cases} 0 \text{ pour } t \leqslant 0 \\ 1 \text{ pour } t > 0 \end{cases}$$

Posons (3) $\dot{\Theta}_0 = \eta$ il vient $\dot{\varepsilon} = a\eta$ pour $t > 0$ et

$$\dot{\eta} = \frac{\varrho M(\varrho\, \eta\, \varphi(\alpha'))\, \varphi(\alpha') - f(\eta)\, \eta - \mu \operatorname{sgn} \eta - f_s\, \psi(\alpha')\, \eta}{I} \quad (4)$$

Divisons (3) par (4)

$$\frac{d\varepsilon}{d\eta} = \frac{a I \eta}{\varrho M \varphi(\alpha') - f_s \psi(\alpha')\, \eta - f(\eta)\, \eta - \mu \operatorname{sgn} \eta} \quad (5)$$

Nous sommes ainsi amenés à étudier une équation différentielle du premier ordre, dans le plan de phase de coordonnées (ε, η).

L'opérateur de commutation divise le plan de phase en 3 régions séparées par les droites

$$\left.\begin{array}{l} \alpha' = \chi_1 \\ \alpha' = -\chi_2 \end{array}\right\} \quad (6)$$

dites droites de commutation. Dans chacune de ces régions $\varphi(\alpha')$ et $\psi(\alpha')$ ont une valeur constante. Il est alors aisé de construire les trajectoires.

Considérons les 6 domaines:

I.	$\alpha' > \chi_1$	$\eta > 0$	$\varphi(\alpha') = -1$	$\psi(\alpha') = 0$	$\operatorname{sgn}\eta = 1$
II.	$\alpha' > \chi_1$	$\eta < 0$	$\varphi(\alpha') = -1$	$\psi(\alpha') = 0$	$\operatorname{sgn}\eta = -1$
III.	$\alpha' < -\chi_2$	$\eta < 0$	$\varphi(\alpha') = 1$	$\psi(\alpha') = 0$	$\operatorname{sgn}\eta = -1$
IV.	$\alpha' < -\chi_2$	$\eta > 0$	$\varphi(\alpha') = 1$	$\psi(\alpha') = 0$	$\operatorname{sgn}\eta = 1$
V.	$-\chi_2 < \alpha' < \chi_1$	$\eta > 0$	$\varphi(\alpha') = 0$	$\psi(\alpha') = 1$	$\operatorname{sgn}\eta = 1$
VI.	$-\chi_2 < \alpha' < \chi_1$	$\eta < 0$	$\varphi(\alpha') = 0$	$\psi(\alpha') = 1$	$\operatorname{sgn}\eta = -1$

Les trajectoires sont définies dans ces domaines par les primitives:

Domaine I

$$\varepsilon_0 - \varepsilon = \int_0^{\eta} \frac{a\, I\, \eta\, d\eta}{\varrho\, M(-\varrho\,\eta) + f(\eta)\,\eta + \mu}$$

II

$$\varepsilon_0 - \varepsilon = \int_0^{\eta} \frac{a\, I\, \eta\, d\eta}{\varrho\, M(-\varrho\,\eta) + f(\eta)\,\eta - \mu}$$

III

$$\varepsilon - \varepsilon_0 = \int_0^{\eta} \frac{a\, I\, \eta\, d\eta}{\varrho\, M(\varrho\,\eta) - f(\eta)\,\eta + \mu}$$

IV

$$\varepsilon - \varepsilon_0 = \int_0^{\eta} \frac{a\, I\, \eta\, d\eta}{\varrho\, M(\varrho\,\eta) - f(\eta)\,\eta - \mu}$$

V

$$\varepsilon_0 - \varepsilon = \int_0^{\eta} \frac{a\, I\, \eta\, d\eta}{(f(\eta) + f_s)\,\eta + \mu}$$

VI

$$\varepsilon_0 - \varepsilon = \int_0^{\eta} \frac{a\, I\, \eta\, d\eta}{(f(\eta) + f_s)\,\eta - \mu}$$

Ces intégrales sont faciles à intégrer numériquement. On obtient alors, dans chaque domaine, un réseau de trajectoires se déduisant l'une de l'autre par simple translation le long de l'axe des ε.

Ces trajectoires donnent une vue d'ensemble du comportement du système dans les conditions envisagées.

Remarquons que les fonctions (I, III), (II, IV), et (V, VI) sont symétriques l'une de l'autre. Ce qui ramène à 3 le nombre des intégrales à déterminer numériquement.

Exemple

Dans le cas d'un moteur dont le couple serait conforme à la figure 5, les trajectoires prennent l'aspect de la figure 6.

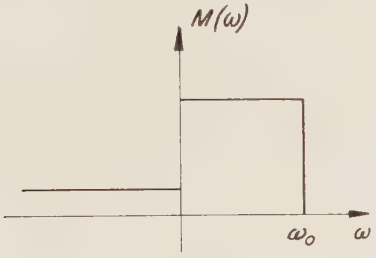


Fig. 5

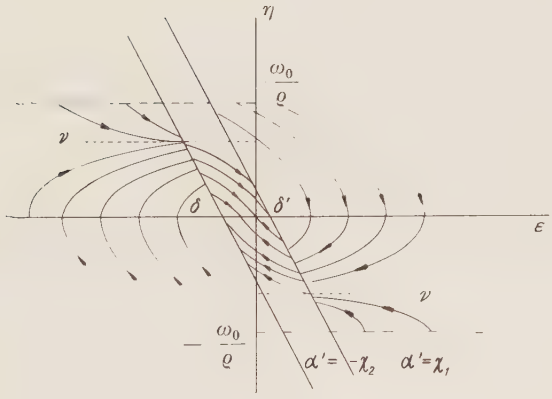


Fig. 6

Les droites ν sont les droites d'équation:

$$\varrho M \varphi(\alpha') - f(\eta)\,\eta - \mu\, sgn\, \eta = 0$$

Le segment $\delta\,\delta'$ est le segment d'arrêt du système. Une méthode semblable peut être utilisée pour étudier le comportement du système dans le cas d'une entrée $\Theta_i(t) = \beta t y(t)$.

ε n'est plus stable mais présente une certaine périodicité dont l'amplitude peut être réduite. Néanmoins chaque valeur de β nécessite l'établissement d'un nouveau plan de phase, ce qui, pour une étude approfondie, devient vite fastidieux si les intégrales doivent être intégrées par une méthode numérique.

Bibliographie

N. Minorsky: Non-linear mechanics, Edwards 1947.
Le Roy A. Mac Coll: Fundamental Theory of Servomechanisms v. Nostrand 1947.
I. Flügge-Lotz: Discontinuous Automatic Control, Princeton 1953.

© 1958 by Schweizerische Physikalische Gesellschaft
Société Suisse de Physique. – Società Fisica Svizzera
Nachdruck verboten – Tous droits réservés – Printed in Switzerland

Paramagnetische Resonanz von Fe^{3+} in $SrTiO_3$ Einkristallen

von **K. Alexander Müller**
Laboratorium für Festkörperphysik der ETH., Zürich

(18. II. 1958)

Summary. The paramagnetic resonance spectrum of Fe^{3+} has been investigated in single crystals of $SrTiO_3$ at 3,2 cm wavelength. The concentration of the ions was about 10^{17} cm^{-3}. The measurements were made at room temperature and at 80° K in function of the orientation of the constant magnetic field to the crystal axes. The variation of the fine structure can be explained using the following spin-Hamiltonian

$$\mathfrak{H} = g\beta SH + \frac{a}{6}\left\{S_x^4 + S_y^4 + S_z^4 - \frac{1}{5}S(S+1)\ (3S^2 + 3S - 1)\right\} + D\left\{S_z^2 - \frac{1}{3}(S^2 + S)\right\}$$

At room temperature, where the $SrTiO_3$ is cubic the splitting at zero magnetic field $|3a|$ is $(5{,}95 \pm 0{,}30) \times 10^{-2}$ cm^{-1}, $D = 0$ and $g = 2{,}004 \pm 0{,}001$. It follows from the magnitude of $|3a|$ that the Fe^{3+} is situated at Ti^{4+} lattice points. We ascribe the small deviation of the line positions from the theoretical values to partial covalent bonding of the Fe with the neighbouring O atoms.

At liquid nitrogen temperature, where the $SrTiO_3$ is tetragonal $|3a|$ is 1,11 times greater and $|D| = (7{,}7 \pm 0{,}3) \times 10^{-4}$ cm^{-1}. At this temperature the lines

$$\pm 5/2 \leftrightarrow \pm 3/2 \text{ and } \pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$$

split if the magnetic field is along the [100] direction and not if it is along the [111] direction. This shows, that the $SrTiO_3$ single crystal consists of tetragonal domains below the phase change which begins at 100° K. A short description of the resonancespectrometer employed is given.

I. Einleitung

Die Mehrheit der mit paramagnetischer Resonanz im festen Körper untersuchten Kristalle bilden diejenigen Salze, welche Kristallwasser enthalten[1]). Bei diesen, zum Beispiel den Alaunen, ist meistens das positive paramagnetische Ion oktaedrisch von Wassermolekülen umgeben. Die Symmetrie dieser Anordnung ist jedoch nicht exakt kubisch. Neuerdings konzentriert sich das Interesse auch auf solche Kristalle, bei welchen das paramagnetische Ion oktaedrisch von Sauerstoff oder Halogenionen umgeben ist[2]) [3]), zum Beispiel Mn^{++} in MgO, Eu^{++} in CaF_2. Die Symmetrie

des kristallinen Feldes am Orte des paramagnetischen Ions ist hier exakt kubisch. Besteht das Oktaeder aus Sauerstoffionen, so zeigen die Resonanzexperimente, dass sich für den Fall von Mn^{+12}) [4]), ebenso für Cr^{+++}, V^{++5}) und Ni^{++6}) ein kovalenter Bindungsanteil bemerkbar macht.

Nachdem in Einkristallen von $SrTiO_3$ wahrscheinlich Resonanzen von dreiwertigen Eisenionen festgestellt worden waren[7]), gelang es, dieses Resultat sicherzustellen und nachzuweisen, dass die Ionen auf Ti-Gitterplätzen eingebaut sind[8]). Diese sind oktaedrisch von Sauerstoffionen umgeben. Die Messungen sind in zweierlei Richtungen von Interesse:

Einerseits ist das $SrTiO_3$ bei Zimmertemperatur kubisch; somit hat man die Möglichkeit, die bereits 1939 von Kronig und Bouwkamp[9]) bis zur dritten Ordnung gerechnete Zeemanaufspaltung des Fe^{3+} im kubischen kristallinen Felde mit dem Experiment zu vergleichen. Die experimentellen Abweichungen deuten auch in diesem Falle auf eine teilweise kovalente Bindung hin.

Andererseits gestatten die Messungen strukturelle Rückschlüsse auf die bei 100° K beginnende kubisch-tetragonale Phasenumwandlung. Dadurch ist die Existenz von tetragonalen Domänen nachgewiesen worden, was für die vorgeschlagenen Experimente der adiabatischen Entpolarisierung an $SrTiO_3$[10]) von Bedeutung ist.

II. Eigenschaften des $SrTiO_3$

Das Strontiumtitanat kristallisiert nach dem Perowskittyp. Es ist bei Zimmertemperatur kubisch und besitzt eine kleine Einheitszelle[11])[12]); diese ist in Figur 1 dargestellt. Jedes Titanion ist oktaedrisch von 6 in der Darstellung nicht eingezeichneten Sauerstoffionen umgeben. In den Zwischenräumen befinden sich die grösseren Strontiumionen, welche die Koordinationszahl 12 besitzen. Wären die Ionen starr und kugelförmig, müssten sie einen solchen Radius besitzen, dass sie sich gerade berühren. Bezeichnen $\overline{SrO}$ und $\overline{TiO}$ die Distanz zwischen den Gitterplätzen der Ionen, so sollte gelten $\overline{SrO} = \sqrt{2} \cdot \overline{TiO}$. Für den realen Kristall beträgt der von Goldschmid eingeführte Toleranzfaktor $t = \overline{SrO}/\sqrt{2} \cdot \overline{TiO} = 0{,}982$, das heisst der Radius des Sr-Ions ist etwas zu klein. Die Ionenradien für die Koordinationszahl 6 betragen nach Naray-Szabo[11]) 1,27 Å für Sr, 0,63 für Ti und 1,32 für O. Die neueste Messung der Gitterkonstanten an synthetischen Einkristallen von $SrTiO_3$ bei Zimmertemperatur ergab den Wert von $a = 3{,}904$ Å $= 2$ TiO[13]). Die daraus berechnete Dichte von 5,124 stimmt innerhalb der Fehlergrenze mit der pyknometrisch bestimmten überein.

Grosse Einkristalle wurden erstmals von Merker und Lynd[14]) bei der National Lead Company nach dem Verneuil-Verfahren (H_2–O_2 Bren-

ner) bei etwa 2100°C hergestellt. Sie sind nach diesem Herstellungsprozess wegen Mangel an Sauerstoff schwarz. Tempert man sie bei 700 bis 1000 °C an der Luft, so werden sie farblos, falls sie genügend rein sind. In

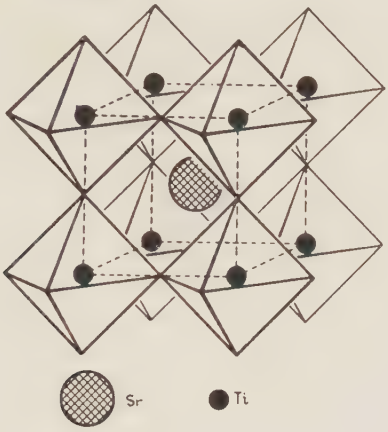


Fig. 1
Anordnung der Ionen im $SrTiO_3$-Kristall

Tabelle I ist die spektroskopische Analyse des bei der genannten Firma verwendeten Ausgangsmaterials in Gewichtsprozenten angegeben.

Tabelle 1

Na < 0,1	Ba 0,007	Si < 0,02	Nb < 0,02
K < 0,1	Pb < 0,0005	Fe 0,001	Sb < 0,002
Mg < 0,001	Al < 0,001	Cr < 0,0002	W < 0,01
Ca 0,004	Cu 0,0003	Mn < 0,0001	V < 0,0005

Der Brechungsindex der Einkristalle bei Na D Licht 5893 Å beträgt 2,407. Sie zeigen eine optische Absorption bei 0,4 μ Wellenlänge, entsprechend einer Eigenleitungsaktivierungsenergie von 3,2 eV bei Zimmertemperatur[15]). Bei ungenügender Oxydation des $SrTiO_3$ zeigt sich eine weitere Absorption bei 2 μ, welche einer auch elektrisch nachgewiesenen Störstellenaktivierungsenergie von 0,68 eV entspricht. Diese wird Elektronen zugeschrieben, welche bei den Sauerstoff-Fehlstellen eingefangen sind[16]).

Das $SrTiO_3$ ist in einem grossen Temperaturbereich paraelektrisch. Die Dielektrizitätskonstante (DK) befolgt zwischen 240° K und 100° K sehr genau ein Curie-Weiss-Gesetz $\varepsilon = C/T - \Theta$ mit den Werten $C \sim 8{,}3 \times 10^4$° und $\Theta = 38$° K. Unterhalb 100° K sind die DK-Werte stets niedriger, als nach dem Curie-Weiss-Gesetz zu erwarten wäre; auch tritt von dieser Temperatur an eine Anisotropie der DK auf, welche mit sinkender Tem-

peratur immer grösser wird. Für Temperaturen, welche kleiner als 38° K sind, sollte das $SrTiO_3$ nach dem oben angegebenen Gesetz ferroelektrisch werden. Die mit kleiner Feldstärke gemessene DK steigt jedoch bis zu 2° K monoton an und erreicht Werte von 20000[17])[10]).

Dieses Verhalten kann nach GRÄNICHER[10]) aus den strukturellen und dielektrischen Untersuchungen an (Ba-Sr)TiO_3 und (Sr-Ca)TiO_3 Mischkristallen verstanden werden. Nach dem (Ba-Sr)TiO_3 Phasendiagramm wäre für reines $SrTiO_3$ bei 40° K eine Umwandlung in eine ferroelektrische, tetragonale Phase zu erwarten. Das aus Röntgenmessungen gewonnene (Sr-Ca)TiO_3-Diagramm weist aber darauf hin, dass bei etwa 100 K eine Umwandlung in eine tetragonale, nicht-ferroelektrische Phase beginnt[18]). Für Temperaturen unterhalb 50° K scheint sich beim $SrTiO_3$ der ferroelektrische Zustand vom nicht-ferroelektrischen energetisch nur wenig zu unterscheiden, da für elektrische Wechselfelder, welche grösser als 300 V/cm sind, Hysteresis-Schleifen mit der üblichen Schaltung beobachtet werden.

Das Zustandekommen der energetisch günstigeren tetragonalen, nicht-ferroelektrischen Phase verdient einige Aufmerksamkeit: MEGAW hat eindrücklich gezeigt, dass die Bindung bei der Perowskitstruktur teilweise homöopolaren Charakter aufweist[19])*), welcher sich bei sinkender Temperatur erhöht. Dabei verschieben sich eine oder mehrere Atomarten im Kristall derart, dass die für die kovalente Bindung geeigneteren Valenzwinkel entstehen. Verschiebt sich nur eine Atomart, so ändert sich der Valenzwinkel nur bei dieser. Die artgleichen Nachbarn verschieben sich um gleiche, aber entgegengesetzte Beträge, und es entsteht eine neue Elementarzelle mit mindestens doppelt so grossem Volumen wie die frühere. Wenn hingegen zwei Atomsorten gleichzeitig ihr Bindungssystem ändern, so ist es gut möglich, dass die benötigte spezifische Verzerrung der Umgebung der einen Art sich mit derjenigen der anderen Art so verträgt, dass die ursprüngliche Einheitszelle erhalten bleibt. Alle artgleichen Atome verschieben sich dann in der gleichen Richtung; der Kristall wird polar. (Siehe die entsprechenden Figuren bei MEGAW[19]).

Typisch für die erste Möglichkeit ist der kubisch-orthorombische Phasenübergang beim $CaTiO_3$. Bei diesem ändert sich der Bindungswinkel der Sauerstoffatome, jedoch nicht derjenige der Titan- und Kalziumatome. Die das Titan umgebenden Sauerstoffoktaeder bleiben starr, verdrehen sich aber um ihr Zentrum gegeneinander. Auf Grund des (Sr-Ca)TiO_3-Phasendiagramms dürfen wir mit einiger Wahrscheinlichkeit annehmen, dass dies auch für den kubisch-tetragonalen Phasen-

* Kernquadrupolresonanzmessungen am Nb^{93} im $KNbO_3$[20]) lassen sich mit der Annahme einer kovalenten Bindung des Nb mit den umgebenden O ebenfalls besser vereinbaren, als mit derjenigen einer ionogenen Bindung.

übergang beim $SrTiO_3$ zutrifft*). Dieser erfolgt stetig mit sinkender Temperatur und beeinflusst das stark paraelektrische Verhalten des Kristalls nur wenig. Die sich alternierend verschiebenden Sauerstoffatome reduzieren den für das Strontiumatom zur Verfügung stehende Raumüberschuss. Die Tendenz nach möglichst dichter Packung der Atome ist charakteristisch für diesen Phasenübergang.

Für die weiter oben beschriebene zweite Möglichkeit ist der kubisch-tetragonal ferroelektrische Phasenübergang beim $BaTiO_3$ typisch. Hier verschieben sich sowohl die Sauerstoff- als auch die Titanatome; der Bindungswinkel beider Atomsorten wird verschieden von 180°. Der Phasenübergang erfolgt unstetig und nahe der vom Curie-Weiss-Gesetz der DK in der kubischen Phase verlangten Temperatur Θ. Theoretisch erhält man ein Curie-Weiss-Gesetz, wenn man das $BaTiO_3$ in der kubischen Phase als reinen Ionenkristall betrachtet und die Wechselwirkung der Dipole, welche durch die Verschiebung der Ionen aus ihrer Ruhelage entstehen, berücksichtigt. (Modell des anharmonischen Oszillators von SLATER[21]). Die elektrostatische Dipol-Dipol-Wechselwirkung, die sich wegen der speziellen Symmetrie des Perowskitgitters besonders stark auswirkt, scheint für diesen Phasenübergang charakteristisch zu sein[22]). In der tetragonalen Modifikation ist der Kristall auch hier stärker kovalent gebunden als in der kubischen. Nach den bis jetzt vorliegenden Messungen ist beim $SrTiO_3$ diese zweite Möglichkeit des Phasenüberganges, selbst bei Temperaturen unterhalb 50° K, energetisch etwas ungünstiger. Dies gilt jedoch nur, falls bei den tiefen Temperaturen und hohen Feldern das ferroelektrische Verhalten nicht durch Oberflächenpolarisationseffekte vorgetäuscht wird.

III. Theorie

Sind in einem Strontiumtitanatkristall dreiwertige Eisenionen auf Gitterplätzen eingebaut, so ist es notwendig, um deren Resonanzspektrum analysieren zu können, die Energieniveaus dieser Störstellen zu kennen. Diese Niveaus sind von der Symmetrie und Grösse des elektrischen Feldes am Orte des Eisenions abhängig. Das Strontiumtitanat ist bei Zimmertemperatur kubisch und wird, wie im vorhergehenden Paragraphen ausgeführt wurde, unterhalb 100° K tetragonal. Wir wollen deshalb zuerst die in einem konstanten Magnetfeld vorhandene Aufspaltung des Grundzustandes des Fe^{3+}-Ions bei einem kubischen, kristallinen Feld und

*) Erstens ist die Mischreihe $(Sr–Ca)TiO_3$ lückenlos, zweitens zeigt das (Sr-Ca)-TiO_3-Diagramm, dass schon Mischkristalle mit kleinen Sr-Konzentrationen beim Abkühlen in eine tetragonale Phase übergehen[18]). Erst bei tieferen Temperaturen gehen die Kristalle über zwei weitere Phasen in die orthorombische Modifikation über. Mit abnehmendem Sr-Gehalt nehmen die Umwandlungstemperaturen zu.

nachher die zusätzliche Störung angeben, welche dadurch bedingt ist, dass der Kristall tetragonal wird.

Das dreiwertige Eisenion hat 5 Elektronen in der 3d-Schale [Konfiguration $(3d)^5$], diese ist halb gefüllt; damit wird das resultierende Bahndrehmoment L null, das Ion hat somit einen $^6S_{5/2}$-Grundzustand.

Bethe[23]) (1929) hat in seiner grundlegenden, gruppentheoretischen Arbeit gezeigt, dass ein $^6S_{5/2}$-Zustand durch ein kristallines Feld kubischer Symmetrie höchstens in ein Quartett und ein Dublett aufspaltet. Der Abstand $3a$ zwischen dem Quartett und dem Dublett wird dann als positiv angenommen, wenn das letztere tiefer liegt. Ein äusseres Magnetfeld hebt dann die verbleibende Entartung ganz auf.

Van Vleck und Penney[24]) (1934) geben die Eigenwertssäkulargleichung an für die Energieniveaus beim Anlegen des Magnetfeldes längs der [100]-Richtung des Kristalles. Um diese zu erhalten, berechnen sie zuerst die Aufspaltung des Grundzustandes des freien Ions in einem kubischen, kristallinen Felde $V(x) = C(x^4 + y^4 + z^4 - 3/5\, r^4)$ mit Spin-Bahnkoppelung $\lambda \vec{L}\vec{S}$. Erst bei einer Fortsetzung der Störungsrechnung bis zur fünften Ordnung erhalten sie das von Bethe angegebene Resultat. Als Nächstes wird dann die Zeemanenergie der Elektronenspins im äusseren Magnetfelde H dazugenommen, wobei die Spins wegen der hohen Ordnung der Wechselwirkung als frei betrachtet werden.

Debye[25]) (1938) hat die Eigenwertsgleichung, welche nach Kramers entartet ist für das konstante Magnetfeld parallel einer [100]-Richtung gelöst und das Aufspalten der 6 Niveaus in Funktion des Magnetfeldes graphisch dargestellt.

Kronig und Bouwkamp[9]) (1939) endlich geben, für Magnetfelder bei denen die Zeemanenergie $\beta \cdot H$ gross ist gegenüber der kristallinen Starkaufspaltung $3a$, die Energieniveaus für willkürliche Richtungen des konstanten Magnetfeldes H gegenüber den Kristallachsen an.

Sie erhalten mit der Bedingung $a \ll b \quad b = \frac{1}{2} g\beta H$

$$\left.\begin{matrix} W_{+1/2} \\ W_{-1/2} \end{matrix}\right\} = \pm \quad b + \quad pa \pm q_1 a^2/b + \cdots$$

$$\left.\begin{matrix} W_{+3/2} \\ W_{-3/2} \end{matrix}\right\} = \pm 3\, b - \frac{3}{2} pa \pm q_2 a^2/b + \cdots \qquad (1)$$

$$\left.\begin{matrix} W_{+5/2} \\ W_{-5/2} \end{matrix}\right\} = \pm 5\, b + \frac{1}{2} pa \pm q_3 a^2/b + \cdots$$

$$\varphi = \alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2$$

$$p = 1 - 5\varphi\,; \qquad q_1 = -\frac{5}{6}(7\varphi - 25\varphi^2)\,;$$

$$q_2 = \frac{5}{32}(1 + 22\varphi - 75\varphi^2)\,; \qquad q_3 = \frac{5}{96}(3 + 50\varphi - 113\varphi^2)$$

wobei β das Bohrsche Magneton, H das angelegte äussere Feld und $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ die Richtungscosinus von H bezüglich der kubischen Achsen bedeuten. Auf den hier bereits eingeführten g-Faktor nach KITTEL kommen wir weiter unten zurück, bei KRONIG und BOUWKAMP ist $g = 2$.

Zur Bezeichnung der Niveaus werden die magnetischen Quantenzahlen M verwendet. Für die Übergänge in einem zum konstanten Magnetfeld H senkrecht stehenden Hochfrequenzmagnetfeld der Frequenz ν_0 gelten die Auswahlregeln $\Delta M = \pm 1$. Wird die Frequenz konstant gehalten, so erhält man bei Variation von H dann Absorption, wenn die Bedingung $h\nu_0 = W_N - W_M$, $|N - M| = 1$ erfüllt ist. Definiert man mit Hilfe des g-Faktors und ν_0 ein Magnetfeld $H_0 = h\nu_0/g\beta$, so erhält man für die 5 möglichen Linien aus (1) die folgenden Formeln:

$$
\begin{aligned}
M = \tfrac{5}{2} \leftrightarrow \tfrac{3}{2} \qquad & H_{\text{res}} = H_0 - 2\,(1 - 5\varphi)\,\frac{a}{g\beta} \\
& + \frac{5}{3}\,(\varphi - 7\varphi^2)\left(\frac{a}{g\beta}\right)^2 \cdot H_0^{-1} + \cdots \\
M = \tfrac{3}{2} \leftrightarrow \tfrac{1}{2} \qquad & H_{\text{res}} = H_0 + \frac{5}{2}\,(1 - 5\varphi)\,\frac{a}{g\beta} \\
& - \frac{5}{48}\,(3 + 178\varphi - 625\varphi^2)\left(\frac{a}{g\beta}\right)^2 \cdot H_0^{-1} + \cdots \\
M = \tfrac{1}{2} \leftrightarrow -\tfrac{1}{2} \qquad & H_{\text{res}} = H_0 \\
& + \frac{10}{3}\,(7\varphi - 25\varphi^2)\left(\frac{a}{g\beta}\right)^2 \cdot H_0^{-1} + \cdots \\
M = -\tfrac{1}{2} \leftrightarrow -\tfrac{3}{2} \qquad & H_{\text{res}} = H_0 - \frac{5}{2}\,(1 - 5\varphi)\,\frac{a}{g\beta} \\
& - \frac{5}{48}\,(3 + 178\varphi - 625\varphi^2)\left(\frac{a}{g\beta}\right)^2 \cdot H_0^{-1} + \cdots \\
M = -\tfrac{3}{2} \leftrightarrow -\tfrac{5}{2} \qquad & H_{\text{res}} = H_0 + 2\,(1 - 5\varphi)\,\frac{a}{g\beta} \\
& + \frac{5}{3}\,(\varphi - 7\varphi^2)\left(\frac{a}{g\beta}\right)^2 \cdot H_0^{-1} + \cdots \qquad (2)
\end{aligned}
$$

In den obigen Formeln bedeutet $a' = a/g\beta$ dasjenige Magnetfeld, in welchem ein magnetisches Moment $g\beta$ die Energie a hat und wird im folgenden ohne Strich verwendet und in Gausseinheiten angegeben. Um Wellenzahlen in Einheiten von cm^{-1} zu erhalten, muss man die Gausswerte mit dem Faktor $g\beta/hc$ multiplizieren.

Die Formeln (1) wurden durch KRONIG und BOUWKAMP erhalten, indem sie in der von VAN VLECK und PENNEY angegebenen Eigenwertsgleichung statt der diagonalen Matrixelemente für die Zeemanenergie der freien Spins in der [100]-Richtung diejenigen für eine beliebige Richtung

des Magnetfeldes bezüglich der Kristallachsen einsetzten und aus dieser die Gleichung sechsten Grades für die Eigenwerte errechneten.

Diese Autoren benützten demnach die Näherung von VAN VLECK und PENNEY. Schreibt man die totale Energie des Ions im Magnetfeld H in der Form: $W = W_F + W_{Kr} + W_{LS} + W_H$ mit $W_F \gg W_{Kr} \gg W_{LS} \gg W_H$, wobei W_F die Energie des freien Ions bedeutet, welche nur von den Konfigurationsvariablen abhängt und nicht vom Spin, W_{Kr} die elektrostatische Energie des Ions im Feld der Nachbarionen, W_{LS} die Spin-Bahn-Wechselwirkungsenergie und W_H die Wechselwirkung des Ions mit dem äusseren Magnetfeld bei einem Kernspin $I = 0$, so ist ersichtlich, dass eine andere Art der Näherung möglich ist. Diese wurde von PRYCE[26]) (1950) benützt. Hier wird zuerst das kristalline, elektrische Feld $V(\vec{x})$ allein als Störung des freien Ions betrachtet. Daraufhin wird die Beeinflussung des tiefsten, aus der vorhergehenden Rechnung erhaltenen Niveaus durch die Spin-Bahn-Koppelung und die Zeemanenergie

$$W_{LS} + W_H = \lambda \vec{L}\vec{S} + \beta \vec{H}(\vec{L} + 2\vec{S}) \tag{3}$$

berechnet, mit der Einschränkung, dass dieses Niveau ein Singulet-Zustand, das heisst Bahndrehmoment null hat. Mit diesem Formalismus erhält man einen Spin-Hamiltonoperator, der nur Spinvariable S enthält, und dessen Matrixelemente die Eigenwertsgleichung für die gesuchten Energieniveaus liefert. PRYCE hat die Störungsrechnung bis zur zweiten Ordnung durchgeführt und erhält einen Operator der Form:

$$\mathfrak{H} = 2\beta(\delta_{ij} - \lambda \Lambda_{ij}) H_i S_j + \{-\lambda^2 \Lambda_{ij}\} S_i S_j = \beta g_{ij} H_i S_j + D_{ij} S_i S_j \tag{4}$$

wobei

$$\Lambda_{ij} = \Lambda_{ji} = \sum_{n \neq o} \frac{\langle o | L_i | n \rangle \langle n | L_j | o \rangle}{E_n - E_o}$$

ein symmetrischer Tensor ist, welcher von den höher liegenden Energieniveaus des Ions im Kristall abhängt. Es ist klar, dass sowohl g_{ij}, als auch D_{ij} von der Symmetrie des kristallinen Feldes abhängen.

Für kubische Symmetrie wird $g_{ij} = g$ ein Skalar, ebenso $D_{ij} = D$. Mit

$$\sum_{ij} D_{ij} S_i S_j = D(S_x^2 + S_y^2 + S_z^2) = D(S)(S+1)$$

ist ersichtlich, dass für diese Form von $\mathfrak{H}$ ohne äusseres Magnetfeld keine Aufspaltung erfolgt.

Besitzt $V(\vec{x})$ tetragonale Symmetrie, so haben diese 2 Tensoren je 2 charakteristische Werte, nämlich parallel und senkrecht der Symmetrie-Achse. Wird diese letztere als Z-Achse genommen, so erhält man nach ABRAGAM und PRYCE[28]) (1951)

$$\mathfrak{H} = \beta g_{\parallel} H_z S_z + \beta g_{\perp}(H_x S_x + H_y S_y) + D\left\{S_z - \frac{1}{3}[S(S+1)]\right\} \tag{5}$$

Der Fall liegt jedoch anders, wenn das freie Ion kein Bahndrehmoment hat. Da keine Bahnentartung besteht, kann sie durch das axiale, kristalline Feld allein auch nicht aufgehoben werden. Aus der nach PRYCE durchgeführten Rechnung mit dem Störterm (3) folgt dann nur die Termaufspaltung im äusseren Magnetfeld

$$\mathfrak{H} = g_{\text{frei}} \cdot H_i S_i , \qquad g_{\text{frei}} = 2{,}0023 .$$

Experimentell wird jedoch eine Aufspaltung der Form (5) mit $g_{\parallel} - g_{\perp} \neq g$ für das Mn^{++} ($^6S_{5/2}$) Ion beobachtet; dabei ist g sehr nahe dem Wert von g_{frei}.

Die Erklärung für dieses Verhalten haben ABRAGAM und PRYCE[28]) (1951) in der Weise gegeben, dass das axiale Feld $\alpha(3z^2 - r^2)$ eine $(3d^4)$ $(4s)$-Konfiguration in die $(3d^5)$-Konfiguration mischt; dabei entsteht eine etwas ellipsoidale Spindichteverteilung. Besteht eine solche, so ist die Dipol-Dipol-Energie der Spins

$$W_{SS} = \sum 4\beta^2 \left[\frac{s_i s_k}{r_{ik}^3} - 3 \frac{(r_{ik} s_i)(r_{ik} s_k)}{r_{ik}^5} \right]$$

abhängig von ihrer Orientierung bezüglich der Achse des Ellipsoides; somit hängen die Eigenwerte von der Spinorientierung ab. Mathematisch koppelt W_{SS} wie W_{LS} Spins mit Bahnen, da beide von Ortsvariablen abhängen; deshalb ist auch durch die Rechnung ein Hamiltonoperator nach (5) zu erwarten. Wegen der schwachen Wechselwirkung ist jedoch D klein, g isotrop und besitzt nahezu den Wert des freien Elektrons. (Siehe auch PRYCE[27]) 1950.)

Wertet man die Eigenwerte des Operators (5) für $g\beta H \gg D$ aus und berechnet analog Gleichungen (2) die Resonanz-Magnetfelder für die möglichen Übergänge bei der Frequenz $\nu_0 = g\beta H_0/h$, so erhält man nach BLEANEY[29]) (1951) und BLEANEY und INGRAM[30]) (1951):

$$\begin{aligned}
M = \tfrac{5}{2} &\leftrightarrow \tfrac{3}{2} \qquad H_{\text{res}} = H_0 - 2D(3\cos^2\Theta - 1) + \cdots \\
M = \tfrac{3}{2} &\leftrightarrow \tfrac{1}{2} \qquad H_{\text{res}} = H_0 - D(3\cos^2\Theta - 1) + \cdots \\
M = \tfrac{1}{2} &\leftrightarrow -\tfrac{1}{2} \qquad H_{\text{res}} = H_0 + \cdots \qquad (6) \\
M = -\tfrac{1}{2} &\leftrightarrow -\tfrac{3}{2} \qquad H_{\text{res}} = H_0 + D(3\cos^2\Theta - 1) + \cdots \\
M = -\tfrac{3}{2} &\leftrightarrow -\tfrac{5}{2} \qquad H_{\text{res}} = H_0 + 2D(3\cos^2\Theta - 1) - \cdots
\end{aligned}$$

In diesen Gleichungen bedeutet Θ den Winkel zwischen der Richtung des axialen Feldes und derjenigen des äusseren Magnetfeldes.

Abragam und Pryce haben, um dem Resultat von van Vleck und Penney für das rein kubische Feld Rechnung zu tragen und trotzdem die bequeme Darstellung in S-Variabeln nicht aufgeben zu müssen, einen Term $(S_x^4 + S_y^4 + S_z^4)$ eingeführt, da, wie wir schon gesehen haben, ein Term $(S_x^2 - S_y^2 + S_z^2)$ keine Aufspaltung ergibt und nur gerade Exponenten von S in Frage kommen.

Da entsprechend der Theorie von Stevens[31]) (1952) gezeigt werden kann, dass die Matrixelemente des Potentials $V(\vec{x}) = C(x^4 + y^4 + z^4 - \frac{3}{5} r^4)$ für ein Ion mit Drehmoment L gleich denjenigen für den Operator

$$L_x^4 + L_y^4 + L_z^4 - \frac{1}{5} L(L+1)\{3L^2 + 3L - 1\}$$

sind, führen Bleaney und Stevens[32]) (1953) für den Fall des dreiwertigen Eisenions den Operator

$$\mathfrak{H} = \frac{a}{6}\left[S_x^4 + S_y^4 + S_z^4 - \frac{1}{5} S(S+1)\{3S^2 + 3S - 1\}\right] \tag{7}$$

ein; xyz bezeichnen die Richtungen der Kristallachsen.

Hat man zusätzlich ein äusseres Magnetfeld und eine leichte tetragonale Deformation des Kristalles, so ergänzt sich der obige Ausdruck zu:

$$\mathfrak{H} = g\beta HS + \frac{a}{6}\left[S_x^4 + S_y^4 + S_z^4 - \frac{1}{5} S(S+1)\{3S^2 + 3S - 1\}\right] + D\left(S_z^2 - \frac{1}{3} S(S+1)\right) \tag{8}$$

Die Matrixelemente dieses Operators führen für $D = 0$ auf die Eigenwertsgleichung sechsten Grades, welche für $g\beta H \gg a$ die in den Gleichungen (1) angegebenen Wurzeln besitzt. Im Faktor g ist nun zusätzlich zum Resultat von van Vleck und Penney die höhere Ordnung der Wechselwirkung der Spin-Bahn- und Spin-Spin-Koppelung berücksichtigt.

Ist $D \ll a$, so kann man in erster Ordnung die in (6) angegebenen Terme für die Resonanzmagnetfelder berücksichtigen und erhält für diese:

$$M = \tfrac{5}{2} \leftrightarrow \tfrac{3}{2} \qquad H_{\text{res}} = H_0 - 2(1 - 5\varphi)a + \frac{5}{3}(\varphi - 7\varphi^2)\frac{a^2}{H_0} - 2D(3\cos\Theta^2 - 1)$$

$$M = \tfrac{3}{2} \leftrightarrow \tfrac{1}{2} \qquad H_{\text{res}} = H_0 + \frac{5}{2}(1 - 5\varphi)a - \frac{5}{48}(3 + 178\varphi - 625\varphi^2)\frac{a^2}{H_0} - D(3\cos\Theta^2 - 1)$$

$$M = -\tfrac{1}{2} \leftrightarrow -\tfrac{1}{2} \qquad H_{res} = H_0 + \frac{10}{3}(7\varphi - 25\varphi^2)\frac{a^2}{H_0}$$

$$M = -\tfrac{1}{2} \leftrightarrow -\tfrac{3}{2} \qquad H_{res} = H_0 - \tfrac{5}{2}(1 - 5\varphi)\,a - \frac{5}{48}(3 + 178\varphi - 625\varphi^2)\frac{a^2}{H_0} + D(3\cos\Theta^2 - 1)$$

$$M = -\tfrac{3}{2} \leftrightarrow -\tfrac{5}{2} \qquad H_{res} = H_0 + 2(1 - 5\varphi)\,a + \frac{5}{3}(\varphi - 7\varphi^2)\frac{a^2}{H_0} + 2D(3\cos^2\Theta - 1) \tag{9}$$

a und D werden, wie bereits erwähnt, in Gausseinheiten gemessen. (Siehe auch BLEANEY und TERNAM[33]) 1954.)

Zum Identifizieren der einzelnen Linien ist es oft wertvoll, ihre relativen Intensitäten zu kennen. Bei leichter Verallgemeinerung des Resultates von TORREY, PURCELL und POUND[34]), erhalten wir unter der Voraussetzung, dass $h\nu_0 \ll kT$ eine integrale Intensität pro Linie, welche proportional ist zu

$$\frac{\nu_0^2}{(2S+1)} \frac{|\mu_{NM}^{\xi}|^2}{kT} \tag{10}$$

Hier bedeutet $|\mu_{NM}^{\xi}|$ das Matrixelement des magnetischen Moment-Operators $\mu_\xi = g\beta J_\xi$ und ξ die Richtung der polarisierten Strahlung. Da wir beim Experiment ν_0 nicht variieren, wird die Intensität der einzelnen Linien proportional zum Quadrat der Matrixelemente. Für freie Ionen sind bekanntlich nur diejenigen verschieden von Null und gleich

$$g^2\beta^2(J + M)(J - M + 1),$$

für welche $M - N = \pm 1$ gilt. Nur die senkrecht zum äusseren Magnetfeld stehende Komponente der Strahlung ist wirksam. Für $L = 0$, $S = 5/2$ erhält man für die Übergänge $5/2 \leftrightarrow 3/2 \leftrightarrow 1/2 \leftrightarrow -1/2 \leftrightarrow -3/2 \leftrightarrow -5/2$ die relativen Intensitäten 5:8:9:8:5.

Ist ein kristallines Feld vorhanden, so werden auch Übergänge mit $\Delta M = \pm 2, \pm 3, \pm 4$ möglich, welche zum Teil durch die in Richtung zum äusseren konstanten Magnetfeld stehende Wechselkomponente induziert werden. KITTEL und LUTTINGER[35]) haben für das dreiwertige Eisenion im kubischen Felde bei einem konstanten Magnetfeld parallel der [100]-Richtung die Intensitäten der einzelnen Linien berechnet. Aus ihren Angaben ist ersichtlich, dass für $H > 10a$ nur noch die für das freie Ion möglichen Übergänge mit den bereits erwähnten Intensitäten beobachtet werden.

IV. Das Resonanzspektrometer

Die Resonanzapparatur arbeitet mit einer Reflexionskavität bei 3,2 cm Wellenlänge und benützt Superheterodyn-Empfang. Solche Apparaturen sind von mehreren Autoren eingehend bezüglich Elektronik und Empfindlichkeit beschrieben worden[36 39]). Wir können uns deshalb kurz fassen und nur bei Details eigener Lösungen länger verweilen. Das Gesamtschema ist in Figur 2 wiedergegeben und wurde derart gewählt, dass mit relativ kleinem Aufwand trotzdem eine gute Empfindlichkeit erzielt wird.

Als Brückenglied wird ein auf die Arbeitsfrequenz von 9382 MHz abgestimmter, 8-dB-Richtungskoppler verwendet. Sein SWV in Richtung

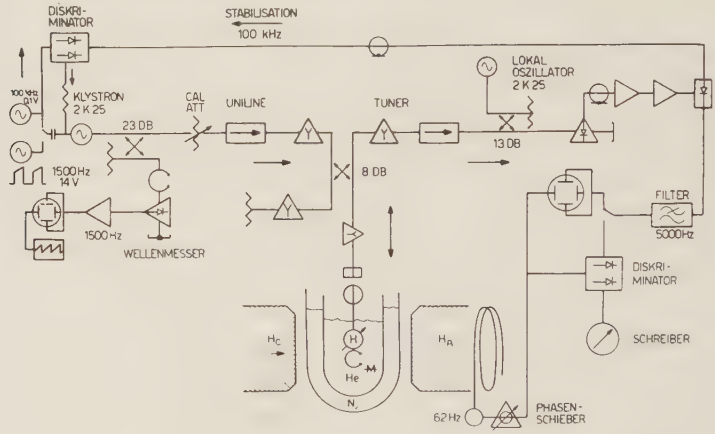


Fig. 2
Schema der Resonanzapparatur

Sender, Kavität und Empfänger ist besser als 1,02 und seine Richtwirkung besser als — 55 dB. Dies wird durch einen Schiebe-Schraubenanpasser im Kompensationsarm und drei 4-Schraubenanpasser in den andern drei Armen erreicht.

Der Sender besteht aus einem temperaturstabilisierten 2K25-Klystron, dem Wellenmesser, der über einen 23-dB-Kreuzkoppler an die Hauptleitung angeschlossen ist, einem geeichten Abschwächer von 0,5 bis 20,5 dB und der «Uniline» zur Entkoppelung des Senders von der Brücke. Die Speisespannungen des Klystrons sind elektronisch stabilisiert. Da alle Einzelteile der Apparatur, mit Ausnahme der «Unilines» am Institut hergestellt worden sind, wurde unser Wellenmesser mit einem Sperry-Rand-Wellenmesser, Modell 273, geeicht. Der Abschwächer, welcher als absorbierende Schicht eine mit Nichrom metallisierte Glasplatte von 80 Ohm pro Quadrat besitzt, wurde mit einem Sperry-Abschwächer, Modell 134, geeicht.

Der Superheterodyn-Empfänger ist von der Brücke ebenfalls durch eine «Uniline» entkoppelt. Das von einem separaten, elektronisch stabilisierten Netzgerät gespeiste 2K25 Lokaloszillator-Klystron gibt über einen 13-dB-Kreuzkoppler der abgestimmten IN23B Mischdiode eine so grosse Leistung ab, dass der Kristallstrom 0,5 mA beträgt. Dieser Arbeitspunkt ist bezüglich Rauschtemperatur und Konversionsverlust der Diode optimal. Als Empfänger dient ein «Torotor-Televisionsstrip» mit einer Kaskode-Vorstufe von 10 Kanälen zwischen 50 und 220 MHz, einer Mischstufe und einem 40 MHz ZF-Verstärker vor der Demodulationsstufe. Er wurde so abgestimmt, dass er auf einer Breite von 2 MHz eine konstante Verstärkung hat. Dies ist wegen der Stabilisierung der Frequenz auf die Kavität notwendig. Das beim 50-MHz-Kanal gemessene Rauschbild des «Televisionsstrips» allein beträgt 14 dB. Nach der Demodulation wird das Signal über ein 5000-Hz-Tiefpassfilter auf den Kathodenstrahl-Oszillographen zur visuellen Beobachtung der Linien oder auf einen Phasendiskriminator nach SCHUSTER[40]) gegeben. Letzterer besitzt eine wählbare Zeitkonstante von 1 oder 0,1 Sekunden. Der von ihm gespeiste Sandborn-Schreiber zeichnet die Ableitung der Resonanzlinien auf. Die Referenzspannung für den Diskriminator, bzw. X-Ablenkung für den Kathodenstrahl-Oszillographen, wird vom Zeemanmodulations-Generator von 62 Hz über einen Toulonphasenschieber geliefert. Der 20-Watt-Generator speist gleichzeitig die auf die Polschuhe gewickelten Zeemanmodulationsspulen, welche ein Modulationsfeld von maximal 20 Gauss erzeugen.

Die zylindrische Kavität ist abstimmbar und arbeitet im TE_{011}-Mode (Rechteckbezeichnung). Figur 3 zeigt eine Schnittzeichnung. Der verschiebbare Boden, auf dem die Probe mit Halter aufliegt, ist als $\lambda/4$ $\lambda/4$-Kurzschluss gestaltet. Der Mode-Unterdrückungsbügel verhindert normalerweise ein Schwingen der Kavität auf 2 benachbarten Frequenzen. Ein konischer Schliff gestattet das Entfernen des Abstimmteils und dadurch ein Einführen der Proben in den Hohlraum. Bei 4,2° K wurde der ebenfalls eingezeichnete Verschluss meistens nicht eingeschraubt, um einen direkten Kontakt des Heliums mit den Kristallen herzustellen. Damit durch die Siedeblasen kein zusätzliches Rauschen entsteht, wird die Kavität mit Styroform ausgefüllt. Dämpfungsmaterial im Abstimmteil verhindert ein wildes Schwingen in der vorhandenen Öffnung und damit ein Ziehen der Resonanzfrequenz der Kavität. Einschraubbare Zusatzblenden von 8 bis 13 mm Durchmesser gestatten eine Anpassung der Hohlraumimpedanz an die Leitungsimpedanz bei verschieden stark absorbierenden Proben. Der Gütefaktor der leeren, an die Leitung angekoppelten Kavität beträgt bei Zimmertemperatur 3500. Die Mikrowellenleitung zwischen Kavität und Richtungskoppler besteht, zur Verhinderung von Wärmeverlusten, aus einem runden, innen versilberten Glas-

rohr und einem Rund-Rechteck-Übergang. 1 Liter Helium im inneren Dewargefäss reicht für eine Messung von 3 bis 4 Stunden aus.

Normalerweise wird die Kavität mit den Blenden auf einen Reflexionskoeffizienten von $\Gamma \sim 0{,}01$ -0,05 angepasst, was beim Abkühlen zu tiefen Temparaturen manchmal eine orientierende Messung erfordert. Je nach der eingestrahlten Energie wird dann mit dem Schiebe-Schraubenanpasser im Kompensationsarm zusätzlich ein phasenrichtiges Signal gegen den Empfänger gesendet, um eine Übersteuerung des ZF-Verstärkers zu verhindern. Diese Kompensation darf aber nie so gross sein, dass

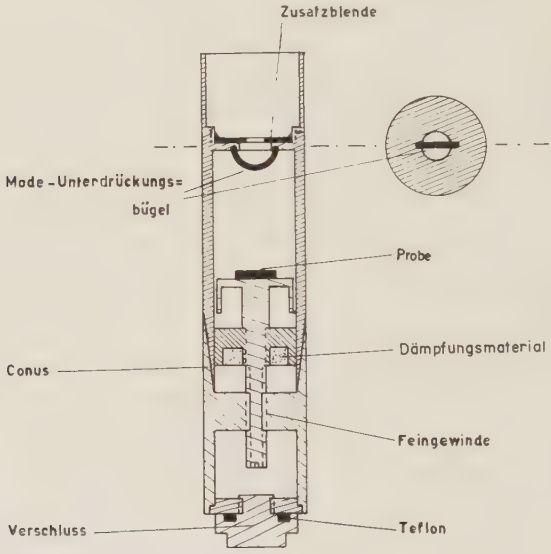


Fig. 3
Hohlraumresonator

der Demodulator wegen zu kleiner Trägerspannung nicht mehr linear arbeitet. Zum Durchführen dieser Abstimmarbeiten werden Rechteck-Impulse von 1500 Hz und 14 Volt Amplitude, denen eine Sägezahn-Spannung von 0,4 Volt und gleicher Frequenz überlagert ist, auf den Repeller des Sender-Klystrons gegeben. Während eines Impulses bleibt die Amplitude konstant, jedoch durchläuft die Frequenz 2 MHz. Auf dem Kathodenstrahl-Oszillographen, ohne vorgeschaltetes 5000-Hz-Filter, wird dadurch die Resonanzkurve der Kavität teilweise sichtbar. Ihr Gütefaktor kann abgeschätzt und der Reflexionskoeffizient direkt abgelesen werden. Um bei tiefen Temperaturen die abgewanderte Resonanzfrequenz der Kavität rasch auffinden zu können und die Lokaloszillatorfrequenz nicht nachstimmen zu müssen, wird die Mischdiode direkt an einen

Kathodenstrahl-Oszillographen angeschlossen, das heisst als quadratischer Gleichrichter benützt.

Ist die Apparatur abgestimmt, gibt man zur eigentlichen Messung ein 100 kHz, 0,1 Volt Sinussignal auf den Repeller des Sender-Klystrons. Das so erzeugte FM-Signal wird durch die nicht ganz auf die Senderfrequenz abgestimmte Kavität in ein AM-Signal von 100 kHz und höheren Harmonischen verwandelt. Das 100-kHz-Signal gelangt nach der Demodulation über eine Frequenzweiche auf einen Diskriminator, dessen Ausgangs-Gleichspannung zur Repellervorspannung addiert wird und dadurch die Frequenz des Klystrons auf die Kavität stabilisiert.

Das Magnetfeld wird von einem wassergekühlten Oerlikon-Magneten von 3,5 Ohm Widerstand erzeugt, welcher um seine senkrechte Achse drehbar ist. Die Polschuhe haben einen Durchmesser von 10 cm und einen Abstand von 6 cm, was der äusseren Abmessung des Stickstoff-Dewars entspricht. Mit dieser Geometrie ist die Feldhomogenität in der Mitte des Luftspaltes 1 Gauss pro cm bei 3500 Gauss ($g = 2$). Wenn der Magnet gesättigt ist, erreicht das Magnetfeld einen Wert von etwa 8000 Gauss ($g \sim 0{,}9$), dazu ist ein Sättigungsstrom von 20 Amp. nötig. Der Magnetstrom stammt von einer 5-kW-Gruppe, die höchstens $^1/_3$ ihrer Volleistung abzugeben braucht. Der Erregerstrom wird Batterien entnommen; er kann durch einen Drehwiderstand, der von einem Synchronmotor angetrieben wird, monoton mit der Zeit variiert werden. Diese einfache Anordnung gestattet, das Magnetfeld, in Bereichen von etwa 800 Gauss um $g = 2$, zeitlich ungefähr linear zu verändern. Da die Gruppe bei 3500 Gauss nahezu im Leerlauf arbeitet, beträgt die Magnetfeldschwankung nur 2–3 Gauss. Diese Stabilität genügte bei den von uns beobachteten Linienbreiten knapp, so dass zur Erhöhung der Genauigkeit die einzelnen Linien 3–4mal aufgenommen wurden*).

Zum Messen des Magnetfeldes benützen wir die erstmals von Lamb und Retherford[42]) beschriebene Methode der zwei auf derselben Achse rotierenden Spulen[43]). Die eine ist die eigentliche Meßspule, welche sich in dem zu messenden Magnetfelde dreht, die andere befindet sich im Felde eines Permanentmagneten und liefert die Referenzspannung. Die Achse wird von einem Synchronmotor angetrieben. Die beiden Wechselspannungen werden über 2 Dekadenwiderstände miteinander verglichen. Als Nullanzeige-Instrument dient ein Kathodenstrahl-Oszillograph, auf dessen X-Ablenkung die Referenzspannung gegeben wird. Auf die Y-Ablenkung gelangt die abzugleichende Nullspannung über ein Tiefpassfilter, das die Phase der zweiten Harmonischen auf $\pi/_2$ schiebt und die

*) Neuerdings haben wir eine elektronische Stabilisierung aufgebaut, welche uns erlaubt, das Magnetfeld, bei einer Schwankung von weniger als $^1/_2$ Gauss, linear mit der Zeit in 2–20 Minuten von 0 auf 8000 Gauss zu steuern[41]).

höheren Harmonischen nicht durchlässt. (Die harmonischen Frequenzen werden durch das inhomogene Magnetfeld des kleinen Permanentmagneten erzeugt.) Sind die Grundfrequenz-Spannungen der zwei Meßspulen, das heisst die zwei Magnetfelder proportional den beiden Widerständen, so entsteht auf dem Kathodenstrahl-Oszillographen der bekannte Lissajou-Schmetterling mit Schnittpunkt seiner Kurve in der Mitte der Skala, was ein Ablesen auf 1 Gauss erlaubt. Durch Vorwärtsschalten einer Widerstandsdekade während einer Resonanzmessung werden bei den Nulldurchgängen des Schnittpunktes auf dem Kathodenstrahl-Oszillographen Magnetfeldmarken auf das Oszillogramm des Sandborn-Schreibers angebracht. Im oberen Bild der Figur 9 sind solche Marken am unteren Rand in Abständen von 41,0 Gauss sichtbar.

Mit einer eingestrahlten Leistung von 0,1 mW und einer Zeitkonstanten des Diskriminators von 0,1 Sekunden können wir bei Zimmertemperatur noch 3×10^{14} Spins DPPH feststellen. Mit der grösstmöglichen Energie unseres Klystrons erhalten wir für unsere Apparatur bei 300° K eine Grenzempfindlichkeit von 5×10^{-11} Mole DPPH. Die beste bei dieser Energie mit einer Resonanzapparatur überhaupt erreichbare Empfindlichkeit liegt nach FEHER[39]) um einen Faktor 10^3 höher. Sie kann mit unserer Apparatur erreicht werden, wenn das Lokaloszillatorrauschen durch eine Brückenschaltung mit 2 Mischdioden eliminiert wird. Ferner müsste man den ZF-Verstärker durch einen solchen mit optimalem Rauschbild ersetzen und an Stelle der Stabilisierung der Klystronspannungen durch Glimmröhren Batterien verwenden, um damit das noch vorhandene Frequenzrauschen zu unterdrücken.

V. Experimentelle Resultate und ihre Interpretation

Die Proben

Die Resonanzmessungen wurden an zwei $SrTiO_3$-Einkristallen ausgeführt, welche uns in freundlicher Weise von der National Lead Company N.Y. zur Verfügung gestellt worden sind. Auf die physikalischen Eigenschaften dieser sehr reinen, synthetischen Kristalle sind wir in Abschnitt II näher eingegangen. Das Ausgangsmaterial der beiden Einkristalle hatte die gleiche Reinheit, wie sie Tabelle I wiedergibt. Aus ihr ist ersichtlich, dass das $SrTiO_3$ 0,01 Gewichtsprozent Eisen enthält, was umgerechnet $1{,}7 \times 10^{17}$ Atome cm^{-3} ergibt. Eine solche Konzentration erlaubt, selbst mit kleinen Proben von 0,2 cm^3 Volumen bei den vorhandenen Linienbreiten der Grössenordnung 10 Gauss und der Empfindlichkeit unserer Apparatur, Resonanzen bereits bei Zimmertemperatur zu beobachten.

Beide Kristalle, welche einen Durchmesser von etwa 10 mm hatten, wurden in 1–2 mm dicke Scheiben zersägt, der erste (Herstellerbezeich-

nung MP-1110-1) mit Schnittflächen senkrecht zur Wachstumsrichtung, der zweite (MP-1110-2) nach erfolgter röntgenographischer Orientierung mit Schnittflächen parallel einer (001)-Ebene. Eine weitere Röntgenmessung ergab für die Flächennormale E, der aus dem ersten Kristall gewonnenen Plättchen, Winkel von $70^2/_3{}^\circ$, 55° und $38^2/_3{}^\circ$ bezüglich der [100]-, [010]- und [001]-Kristallachsen. Die Grundfläche der verwendeten Proben hatte einen etwa rechteckigen Querschnitt von 5×10 mm. Die Kleinheit der Proben war deshalb günstig, weil die Messungen durch die hohe DK und deren grossen Temperaturkoeffizienten erschwert wurden. Bei Zimmertemperatur wurde die Resonanzfrequenz der Kavität mit Proben von über 1 mm Dicke oft erst nach mehreren Stunden stationär. Die dabei beobachtete Frequenzverschiebung gegenüber dem anfänglichen Abstimmwert betrug manchmal bis zu 10 MHz. Auch der Gütefaktor des Resonators änderte sich bis zum stationären Zustand um 20–30%.

Wir vermuten, dass wegen der hohen DK mehrere Schwingungsmoden in der Kavität vorhanden waren. Durch die thermischen Schwankungen der DK oder der statischen Entladung der Kristalle bildeten sich dann andere Schwingungszustände im Resonator aus, welche sowohl die Güte, als auch die Resonanzfrequenz veränderten. Sicher war jedenfalls nicht nur der TE_{011}-Mode angeregt, da bei einer Drehung des konstanten Magnetfeldes bezüglich der Richtung des Mode-Unterdrückungsbügels die Amplitude der Absorption nicht mit dem Zwischenwinkelcosinus variierte, sondern fast konstant blieb. Bei diesem Versuch war keine Sättigung vorhanden.

Messungen bei Zimmertemperatur

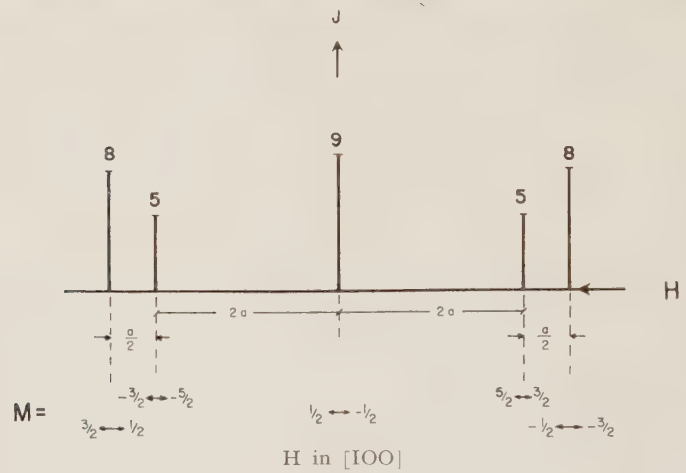
Wir wollen zuerst die Messungen bei Zimmertemperatur beschreiben und diskutieren, da sich hier die Eisenionen in einem rein kubischen Kristallfeld befinden.

Für hinreichend hohe Frequenzen zeigt Figur 4 die theoretisch, entsprechend Gleichungen (2) und (10), zu erwartende Intensität und Lage der Linien in erster Ordnung, falls das äussere Magnetfeld parallel einer [100]-Richtung des Kristalls ist. Die Quantenzahländerungen für die einzelnen Resonanzen sind ebenfalls eingezeichnet. Der Abstand der Linien $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$ beträgt $|5a|$, derjenige der Linien $\pm 5/2 \leftrightarrow \pm 3/2$ $|4a|$ und zwar unabhängig von der Frequenz ν_0 der Mikrowellenstrahlung, beziehungsweise des damit definierten Magnetfeldes $Ho = h\nu_0/g\beta$. Bei einem Magnetfeld parallel einer [111]-Richtung sind diese Abstände mit einem Faktor $-2/3$ zu multiplizieren, bei einem Felde parallel der [110]-Richtung mit einem solchen von $-1/4$. In zweiter Ordnung verlangen die Gleichungen (2) noch eine Verschiebung der beiden Linien der Intensität 8 um einen kleinen Betrag in gleicher Richtung. Ihr Abstand

*

ist somit nur durch den Term erster Ordnung bestimmt. Dasselbe gilt für die beiden Linien mit Intensität 5. Die Linie des Übergangs $+1/2 \leftrightarrow -1/2$ mit Intensität 9 hat ebenfalls einen nicht verschwindenden, winkelabhängigen Term zweiter Ordnung.

Figur 5 zeigt die experimentellen Resonanzkurven für Magnetfelder parallel den [100]-, [111]- und [110]-Richtungen. Aufgezeichnet sind die Ableitungen der Amplituden der Absorptionskurven. Der Wert des



H in [IOO]

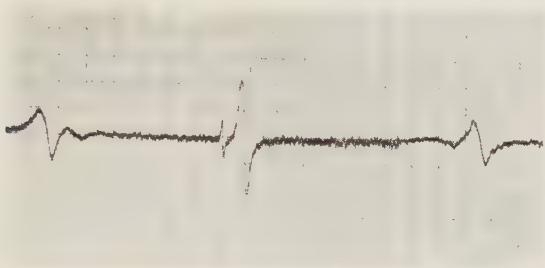
Fig. 4

Die theoretische Lage der Feinstrukturlinien in erster Ordnung und ihre relative Intensität beim Fe^{3+} Ion im kubischen Felde. Das Magnetfeld ist parallel der [100] Richtung

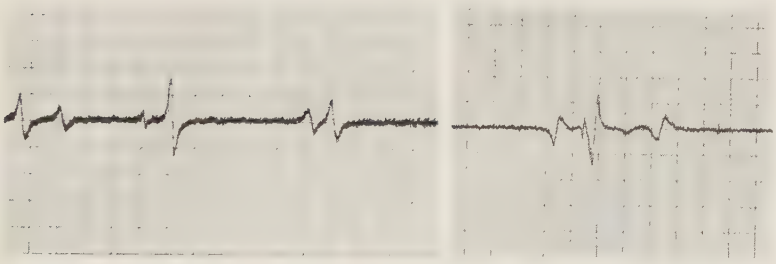
Magnetfeldes nimmt nach links zu. Als Probe diente ein parallel einer (001)-Ebene orientiertes Plättchen, auf dessen Schnittfläche zusätzlich eine [100]-Richtung markiert war. Deutlich sind für die [111]-Richtung die von Fe^{3+}-Ionen herrührenden 5 Linien zu unterscheiden. Links der $+1/2 \leftrightarrow -1/2$-Linie liegt noch eine schwache, ziemlich scharfe und isotrope Linie. Letztere stammt von einer kleinen Konzentration von Cr^{3+}-Ionen*), welche ebenfalls in den Proben enthalten war. Ihr durch Vergleich mit der Resonanz des DPPH erhaltener g-Faktor beträgt $1{,}979 \pm 0{,}001$. Die Auswertungen der Fe^{3+}-Resonanzen bei Zimmertemperatur sind mittels der drehenden Magnetfeldmeßspule relativ zu dieser Linie gemacht worden. So erhält man aus dem Abstand je zweier

*) Wie aus Tabelle I hervorgeht, war die in der Ausgangssubstanz vorhandene Konzentration an Cr kleiner als 0,0002 Gewichtsprozent. Messungen an einem etwa 0,005 Gewichtsprozent Cr enthaltenden Einkristall von $SrTiO_3$ zeigte die gleiche isotrope Linie, welche von den gradzahligen Isotopen des Chroms herrührt und ausserdem die Hyperfeinlinien des Isotops Cr^{53} mit einem Kernspin von 3/2[44]).

gleich intensiver Linien für die genannte Richtung eine kristalline Starkaufspaltung $5a$ von 1002 und 1006 Gauss. Auch die Verschiebungen zweiter Ordnung haben die richtige Grösse. Im Gegensatz dazu sind für die [100]-Richtung die Linien der theoretischen Intensität 5 und 8 zusammengerückt, so dass je zwei kaum mehr aufgelöst sind. Die Linien *gleicher* Intensität haben sich somit in entgegengesetzter Richtung verschoben. Mit der Erwartung stimmt dagegen die Beobachtung überein,



H in Richtung [100]



H in Richtung [111] *H* in Richtung [110]

Fig. 5

Paramagnetische Resonanz von Fe^{3+} im $SrTiO_3$ bei 300° K

dass die Abstände der Linien für diese Richtung konstant sind gegenüber einer Veränderung der Mikrowellenfrequenz. Bei einer Variation der letzteren von $(8{,}2 \pm 0{,}1)\,\%$ betrug die mittlere Schwankung der Abstände nur 0,3%. Diese Messung wurde mit aller dazu nötigen Vorsicht ausgeführt. Der aus der mittleren Linie erhaltene g-Faktor beträgt $2{,}004 \pm 0{,}001$ und stimmt mit dem aus der [111]-Messung berechneten überein.

Bei der [110]-Richtung sind wieder nur die 3 stärkeren Linien deutlich, was teilweise bedingt ist durch die Verschiebung zweiter Ordnung, als auch durch die grössere Linienbreite der schwächeren Linien.

Klarer wird der Sachverhalt aus den Figuren 6 und 7. Bei diesen sind die experimentell gemessenen Nulldurchgänge der Ableitungen der Ab-

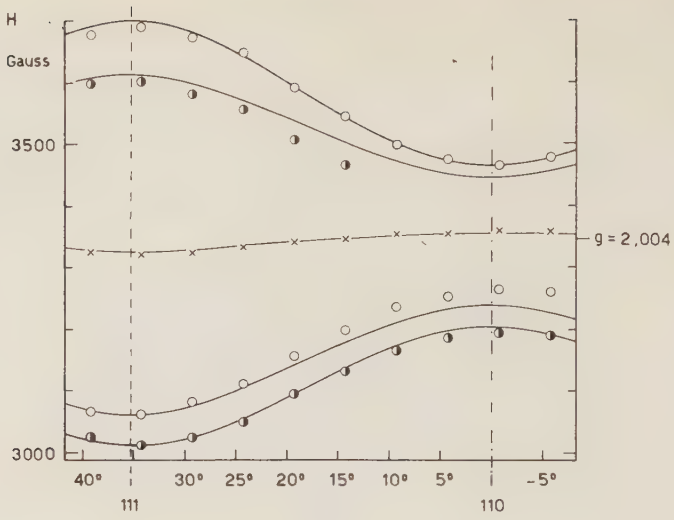


Fig. 6

Variation der Feinstrukturlinien von Fe^{3+} im $SrTiO_3$ bezüglich einer Drehung des Magnetfeldes um die $[1\bar{1}0]$-Richtung bei 300° K.

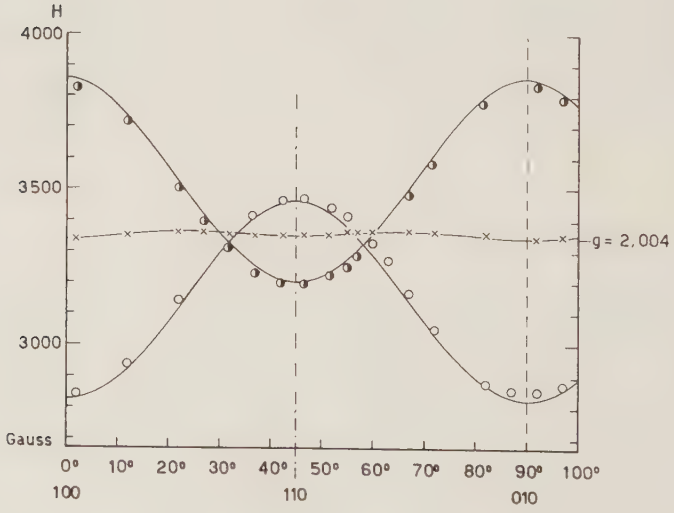


Fig. 7

Variation der $M \pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$ und $M = +1/2 \leftrightarrow -1/2$ Feinstrukturlinien von Fe^{3+} im $SrTiO_3$ bezüglich einer Drehung des Magnetfeldes um die [100]-Richtung bei 300° K.

sorptionskurven eingetragen, zusammen mit den aus Gleichungen (2) errechneten Kurven für einen Parameterwert von $|5a| = 1032$ Gauss und dem g-Faktor von 2,004. Auf die Wahl des Parameters $|5a|$ wird später eingegangen. Figur 6 zeigt das Ergebnis für eine Drehung des Magnetfeldes um eine $[1\bar{1}0]$-Achse. Die Messpunkte der mittleren Linie folgen der errechneten Kurve am besten. Diejenigen der äusseren beiden Linien stimmen mit den theoretischen Werten besser überein als die inneren zwei. Bei den letzteren zeigt sich eine erhebliche Abweichung für die [110]-Richtung; auch nimmt ihre Linienbreite, bei der Drehung gegen diese Richtung, so stark zu, dass einer der beiden Übergänge nicht bis zur genannten Achse ausgemessen werden konnte.

In Figur 7 ist das Resultat für eine Drehung des Magnetfeldes in einer (001)-Ebene wiedergegeben. Da die Linien der Übergänge $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 5/2$ in dieser Ebene nicht genügend aufgelöst sind, wurden sie nicht eingetragen. Während auch hier die gemessenen Werte für die mittlere Linie mit den theoretischen gut übereinstimmen, weichen diejenigen der $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$-Linien um 5% in den Hauptrichtungen von ihr ab und zwar verschieben sie sich für die [100]- und [010]-Richtung gegen die mittlere Linie und in der [110]-Richtung von ihr weg. Die zuletzt diskutierte Figur zeigt recht eindrücklich, dass am Orte der Fe^{3+}-Ionen ein Feld kubischer Symmetrie herrscht.

Bei allen Aufnahmen war die $+1/2 \leftrightarrow -1/2$-Resonanz stets die schärfste; ihre zwischen den Umkehrpunkten gemessene Linienbreite beträgt 10 ± 1 Gauss für die [100]- und [111]-Richtung; in der [110]-Richtung ist sie 2 Gauss breiter. Die beiden Linien des Übergangs $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$ sind nicht ganz so scharf, aber immer noch schärfer als diejenigen des Übergangs $\pm 5/2 \leftrightarrow \pm 3/2$. Da die fünf Linien nur in der [111]-Richtung sauber getrennt sind, konnte das Verhältnis der Linienbreiten nur in dieser Richtung zu 1,3:1,4:1:1,4:1,3 bestimmt werden. Es scheint, dass die äusseren Linien in den anderen beiden Hauptrichtungen breiter sind. Wie leicht einzusehen ist, konnten mit Hilfe der Linienbreiten in der Richtung der Raumdiagonalen auch die Intensitäten, allerdings nur sehr roh, abgeschätzt werden. Der Abstand zwischen Maximum und Minimum der Ableitung der Amplitude der einzelnen Linie wurde quadriert und mit der dritten Potenz der Linienbreite multipliziert. Das so erhaltene Intensitätsverhältnis beträgt 6:1,4:9:1,4:6.

An einem Plättchen des Kristalls MP-1110-1 mit Orientierung E wurde ebenfalls eine Messung durchgeführt. Die Variation der Lage und der Linienbreite der 5 Feinstrukturlinien bezüglich einer Drehung des zu E senkrechten Magnetfeldes um einen Winkel von 120° bestätigte die vom anderen Kristall erhaltene Information.

Bestimmung der Starkaufspaltung

Um den Absolutwert der Starkaufspaltung abschätzen zu können, haben wir in Figur 8 die Grösse $|5a|$ aufgetragen, wie sie aus je 2 unabhängigen Messungen in drei Richtungen des Kristalls berechnet wurde. Auf den einen Messpunkt für die [111]-Achse sind wir schon eingegangen, der andere wurde aus der Messung des Kristalls mit Orientierung E erhalten. In der Ebene E (70 2/3°, 55°, 38 2/3°) existiert nämlich eine Richtung R, welche einen Winkel von nur 3° mit der $[\bar{1}\bar{1}1]$-Achse des Kristalls

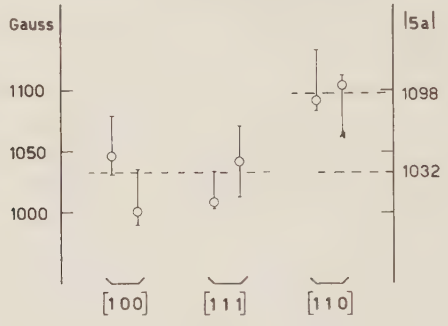


Fig. 1

Bestimmung von $|5a|$. 1000 Gauss = 0,09359 cm^{-1}.

hat und Winkel von 56°, 57° und 51 1/2° mit den $[\bar{1}00]$-, $[0\bar{1}0]$- und [001]-Richtungen bildet.

Für die [100]- und [110]-Richtungen wurde die Grösse $|5a|$, mangels genügender Auflösung der zwei andern äusseren Linien, aus den $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$ Nulldurchgängen berechnet. Je einer der beiden Punkte stammt von einer Messung, bei der das äussere Magnetfeld parallel einer (100)-, bzw. (110)-Ebene gedreht worden ist. Bei diesen Drehungen wird der Abstand der zwei Linien für ein Magnetfeld in Richtung [100] beide Male maximal, während er für ein Magnetfeld parallel einer [110]-Richtung für die erste Drehung ein Maximum und für die zweite ein Minimum durchläuft, wie aus Figuren 6 und 7 hervorgeht (Sattelpunkt).

Da der grösste experimentelle Fehler von der Orientierung der Kristalle herrührt, kommen diese Extremaleigenschaften auch in den eingezeichneten Fehlergrenzen zum Ausdruck. Nur für die Messung in der Richtung R (annähernd $[\bar{1}\bar{1}1]$) des Kristalls MP-1110-1 wurde die Fehlergrenze symmetrisch eingezeichnet.

Die aus den Resonanzmessungen durch Rotieren des Magnetfeldes bestimmten Achsen der Kristalle wichen im ungünstigsten Falle um 2,7° von den röntgenographischen Richtungen ab. Der grösste Teil dieses Fehlers dürfte durch das schwierige Justieren der kleinen Kristalle auf dem Polystyrol-Halter bedingt worden sein. Diese Abweichungen wurden

bei der Auswertung berücksichtigt. Doch ist für eine bestimmte Magnetfeld-Richtung noch in der Normalebene zur Drehebene des Magneten eine gleich grosse Abweichung möglich. Während die besprochenen Fehler etwa 3% ausmachen, sind die durch die DK bedingte Frequenzverstimmung der Kavität im Verlaufe einer Aufnahme hervorgerufenen mit höchstens 1% zu veranschlagen.

Figur 8 zeigt, dass ausserhalb des Messfehlers der aus der [110]-Richtung bestimmte Wert grösser ist als der aus den [100]- und [111]-Richtungen erhaltene. Er beträgt für die erste 1090 Gauss und für die anderen beiden im Durchschnitt 1032 Gauss. Mit dem letztgenannten Wert wurden die theoretischen Kurven in den Figuren 6 und 7 berechnet. Aus der Darstellung kann man entnehmen, dass $5a$ sicher zwischen 1010 und 1110 Gauss liegen muss. Auch die Berücksichtigung der mit den $\mp 3/2 \leftrightarrow \mp 1/2$ zusammengerückten $\mp 5/2 \leftrightarrow \mp 3/2$-Linien in der [100]-Richtung ergibt kein grösseres Fehlerintervall. In Wellenzahlen umgerechnet erhält man für den üblicherweise angegebenen Starkaufspaltungsparameter $|3a|$ den Wert und die Grenzen von

$$|3a| = (5{,}95 \pm 0{,}30) \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}.$$

Diskussion der Resultate bei Zimmertemperatur

Aus unseren Messungen geht klar hervor, dass es sich um die Resonanz von dreiwertigen Eisenionen handelt, welche sich in einem Kristallfeld kubischer Symmetrie befinden. Daraus folgt, dass diese Ionen entweder auf Ti^{4+}- oder Sr^{2+}-Gitterplätzen eingebaut sein müssen. GOLDSCHMID[45]) gibt für den Ionenradius des Fe^{3+} 0,67 Å an, der demjenigen des Ti^{4+} von 0,63 Å sehr nahe kommt, während derjenige des Sr^{2+} fast doppelt so gross ist. Von diesem Gesichtspunkt aus ist somit der Einbau an einem Ti-Gitterplatz wahrscheinlicher.

Im Abschnitt II über das $SrTiO_3$ haben wir gezeigt, dass die Ti-Ionen oktaedrisch von 6 Sauerstoffionen umgeben sind und auf 2% genau solche Radien besitzen, dass sie sich gegenseitig berühren. Der Abstand TiO ist 1,95 Å. Substituiert nun ein Fe^{3+} ein Ti^{4+}, so erzeugen die sechs O^{2-} durch ihre Ladung ein kristallines Feld, dessen Grösse eine bestimmte Starkaufspaltung $3a$ bei den $3d$-Elektronen des Eisens zur Folge hat. Low hat die paramagnetische Resonanz von Fe^{3+} im MgO gemessen[46]). Die sich auf Mg^{2+}-Gitterplätzen befindenden Fe^{3+} sind hier ebenfalls von 6 Sauerstoffionen oktaedrisch umgeben. Der Abstand MgO ist nach EWALD und HERMANN 2,10 Å[47]), doch nimmt Low an, dass sich dieser Abstand etwas verkleinere, weil die Fe^{3+} die O^{2-} elektrostatisch bis zur Berührung anziehen. Er erhält für die Starkaufspaltung $3a = 6{,}15 \times 10^{-2}$ cm^{-1} und für $g = 2{,}0037 \pm 0{,}0007$. Diese Werte stimmen innerhalb der Fehlergrenze mit unseren Resultaten überein. Das gleiche muss also auch

für die Kristallfeldstärke am Orte der Fe^{3+} und damit für die Distanzen FeO in beiden Kristallen gelten. Wir können daraus mit Sicherheit schliessen, dass die von uns beobachteten Resonanzen von Fe^{3+}-Ionen stammen, welche sich auf Ti^{4+}-Plätzen befinden.

Aus der integrierten Intensität der $+1/2 \leftrightarrow -1/2$-Resonanz konnte mit Hilfe von Gleichung (10) geschlossen werden, dass der grösste Teil des Eisens, das optisch in der Ausgangssubstanz nachgewiesen worden war, dreiwertig eingebaut ist. Wir können aber die Möglichkeit nicht ausschliessen, dass Eisen einer anderen Wertigkeit, zum Beispiel Fe^{2+}, mit einer kleineren Konzentration in unseren Proben ebenfalls vorhanden ist. Ein Versuch zur Reduktion der Fe^{3+} durch Glühen einer Probe bei 1000°C in Wasserstoffatmosphäre ergab keine Verkleinerung der Intensität der Fe^{3+}-Linien, ebenso wurden keine neuen beobachtet. Immerhin ist es möglich, dass durch einen andern Herstellungsprozess des $SrTiO_3$ Fe^{2+} etwa an Sr^{2+}-Gitterplätzen eingebaut werden könnte. Hornig, Jaynes und Weaver[48]) haben paramagnetische Resonanzexperimente an polarisierten $BaTiO_3$-Einkristallen ausgeführt, welche mit Eisen dotiert waren. Ob die von ihnen beobachteten Linien von Fe^{2+}-Ionen stammten, die auf Ba^{2+}-Gitterplätzen eingebaut sind, ist noch offen.

Unser Wert der Starkaufspaltung weicht gegenüber den von Bleany und Ternam[33]) in den Alaunen gemessenen Werten von $3a = -3{,}8 \times 10^{-2}$ bis $-4{,}0 \times 10^{-2}$ cm^{-1} ziemlich ab. Wir sind der Ansicht, dass diese Tatsache durch die verschiedenen elektrischen Kristallfelder am Orte des Eisenions bedingt ist und zwar in erster Linie durch die verschiedene Art und Weise, wie diese erzeugt werden und erst in zweiter Linie durch die verschiedenen interatomaren Abstände zu den nächsten Nachbarn. Während der wesentliche Teil des elektrischen Kristallfeldes bei den hydrierten Salzen von den *Dipolmomenten* der 6 oktaedrisch angeordneten H_2O-Molekülen herrührt, wird er beim $SrTiO_3$ und MgO in erster Ordnung von der *Ladung* der 6 O^{2-}-Ionen erzeugt.

Das Potential in der Nähe des Ortes (o, o, o), bei einer Umgebung von 6 Ionen der Ladung q im Abstand a, das heisst an den Punkten $(\pm a, o, o)$; $(o, \pm a, o)$; $(o, o, \pm a)$ errechnet sich zu:

$$V_p = \sum_{i}^{6} \frac{q_i}{r_{pq_i}} = C_q \cdot \left(x^4 + y^4 + z^4 - \frac{3}{5} r^4\right) + \cdots C_q = \frac{35}{4} \cdot \frac{q}{a^5}$$

Für eine Umgebung mit 6 H_2O-Molekülen hat Polder[49]) für den Koeffizienten des Kristallfeldpotentials $V(\vec{x}) = C(x^4 + y^4 + z^4 - 3/5\, r^4)$ den Wert $C_\mu = -175/4 \cdot \mu/b^6$ angegeben, wobei μ das mit den negativen Enden nach innen gerichtete Dipolmoment der Wassermoleküle und b der Abstand von diesen zum paramagnetischen Ion bedeutet.

Wir wollen nun das Verhältnis C_q/C_μ berechnen. Das Dipolmoment des Wassers beträgt $\mu = 1{,}8 \times 10^{-18}$ ESE und den Abstand b setzen wir gleich a plus die Hälfte der Dipollänge $d = \mu/e$. Da weiter $q = -2e$ ist, erhalten wir für $C_q/C_\mu = +1{,}33$. Wir haben bei der Berechnung sehr vereinfachende Annahmen gemacht und insbesondere die Polarisation vernachlässigt. Immerhin können wir unserem Resultat entnehmen, dass C_q und C_μ das gleiche Vorzeichen besitzen und von gleicher Grössenordnung sind. Weiter ist vermutlich $C_q > C_\mu$. Nun weist Low[50]) in einer andern kurzen Arbeit darauf hin, dass das Vorzeichen von $3a$ bei den Alaunen negativ sei, während er im Falle des $MgO:Fe^{3+}$ ein positives Vorzeichen misst*). Daraus kann man schliessen, dass die Starkaufspaltung nicht linear vom Kristallfeld abhängt. Ziemlich sicher existiert neben einem linearen Term ein quadratischer, wie aus dem folgenden Abschnitt hervorgehen wird. Da für C-Werte, welche um -3×10^{30} ESE schwanken, das Vorzeichen von $3a$ einmal positiv und einmal negativ ist, dürften die beiden Terme für die genannten Feldstärken etwa gleich gross sein.

Der quantitative Zusammenhang zwischen $3a$ und C wurde bis jetzt noch nicht errechnet, weil man sich über den exakten Mechanismus, der die Aufspaltung verursacht, nicht im klaren ist. Sicher erhält man eine solche durch die kombinierte Wirkung des kubischen Kristallfeldes und der Spin-Bahn-Koppelung, wie sie VAN VLECK und PENNEY[24]) vorgeschlagen haben. Diese beiden Autoren geben jedoch an, dass man eine Aufspaltung bei einer Fortführung der Störungsrechnung bis zur fünften Ordnung erhält, während neuerdings LACROIX[51]) allgemein für S-Zustände zeigen konnte, dass eine solche Rechnung erst in sechster Ordnung eine Aufspaltung ergeben kann. Nach HUTCHISON, JUDD und POPE[52]) ist sowohl ein linearer, als auch ein quadratischer Mechanismus in $V(\vec{x})$ möglich. Für den ersten würde die schematische Darstellung folgendermassen aussehen:

$$\langle {}^6S_{5/2} \mid \Lambda \mid {}^4P_{5/2} \rangle \langle {}^4P_{5/2} \mid \Lambda \mid X_{5/2} \rangle \langle X_{5/2} \mid V \mid Y_{5/2} \rangle \langle Y_{5/2} \mid \Lambda \mid X_{5/2} \rangle \langle X_{5/2} \mid \Lambda \mid {}^4P_{5/2} \rangle \langle {}^4P_{5/2} \mid \Lambda \mid {}^6S_{5/2} \rangle . \qquad (12)$$

falls der Grundzustand über den ${}^4P_{5/2}$-Zustand durch die Spin-Bahn-Koppelung Λ aufgespalten wird. $X_{5/2}$ und $Y_{5/2}$ stellen wie ${}^4P_{5/2}$ angeregte Zustände der $(3d)^5$-Konfiguration dar, zum Beispiel $X = {}^4D$, $Y = {}^4F$. Für eine Berechnung nach obigem Schema ist die Kenntnis der angeregten Niveaus notwendig, über welche jedoch weder experimentelle noch theoretische Daten vorliegen. Einer quantitativen Ermittlung der Starkaufspaltung müsste also eine Bestimmung der angeregten Niveaus vorangehen. Eine solche wäre ausserdem noch wertvoll, um abschätzen

*) Der von Low angegebene Koeffizient D des Kristallpotentials $W = -eV(\vec{x})$ ist gleich $-eC_q$ (C_q ist der Koeffizient des elektrischen Feldpotentials $V(\vec{x})$).

zu können, wie stark sich die tiefsten Niveaus dem Grundzustand beimischen.

Die von Kronig und Bouwkamp[9]) berechneten 6 Zeemanniveaus haben einen reinen $^6S_{5/2}$-Grundzustand zur Voraussetzung, welcher gemäss der Gruppentheorie noch durch das kubische Kristallfeld aufgespalten ist. Da wir eine Abweichung der Messpunkte von der theoretischen Kurve beobachten, ist es sicher, dass in unserem Falle eine nicht zu vernachlässigende Zumischung vorliegt. Ausser der bereits erwähnten Möglichkeit kann eine solche auch von einer kovalenten Bindung der $(3d)^5$-Elektronen herrühren.

Owen[53]) hat in einer sehr schönen Arbeit gezeigt, dass die $d\gamma$-Elektronen der Übergangsmetalle in $M(H_2O)_6$-Komplexen, M $3d^n$, σ-Bindungen mit den $2p_\sigma$- und $2s$-Bahnen der Sauerstoffatome bilden können. Dadurch werden die $d\gamma$-Bahnen so verändert, dass die Elektronen in diesen Bahnen sich teilweise bei den Atomen des Komplexes befinden. Eine solche Bindung hat den Effekt, dass sie die Aufspaltung zwischen dem $d\gamma$-Dublett und dem $d\varepsilon$-Triplett vergrössert und ist in dieser Beziehung einer Vergrösserung der elektrischen Kristallfeldstärke ähnlich. Diese Aufspaltung ist für M^{3+}- stärker als für M^{2+}-Ionen. Dies weist darauf hin, dass für M^{3+} die σ-Bindung stärker ist. Vermutlich bewirkt die grössere positive Ladung eine vermehrte Tendenz der Sauerstoffelektronen, sich auf $d\gamma$-Bahnen des zentralen M-Ions zu bewegen. Bei genügend starker σ-Bindung können in analoger Weise die zentralen $d\varepsilon$-Bahnen π-Bindungen mit den $2p_\pi$-Bahnen der Sauerstoffatome bilden.

Diese Theorie ist sowohl in $M(H_2O)_6$-Komplexen, als auch im MgO bestätigt worden. In beiden Fällen zeigt sich, dass für Ni^{2+} eine schwache σ-Bindung von 3-4% vorhanden ist[6]) [53]), während für Cr^{3+} eine mittelstarke σ-Bindung und eine schwache π-Bindung nachgewiesen wird[5]) [55]). Das Fe^{3+}-Ion mit der Konfiguration $3d^5$ - $(d\varepsilon)^3\,(d\gamma)^2$ dürfte wegen seiner Grösse und Ladung eine dem Cr^{3+}-Ion entsprechende Bindung zu seinen Sauerstoffnachbarn aufweisen. Die Elektronen der $d\gamma$-Schale haben die grösste Aufenthaltswahrscheinlichkeit in Richtung Ti O Ti -O–, also [100], diejenigen der $d\varepsilon$-Schale auf den Winkelhalbierenden, somit in Richtung [110]. In diesen beiden Richtungen messen wir auch die grösste Abweichung von den Werten, welche einen reinen $^6S_{5/2}$-Zustand zur Voraussetzung haben. In der [111]-Richtung ist die Abweichung am kleinsten. Wegen dieser speziellen Richtungsabhängigkeit sind wir der Ansicht, dass die Zumischung zum $^6S_{5/2}$-Zustand primär eher von kovalenter Bindung, als von der Lage der angeregten Niveaus herrührt. Wir sagten primär, weil die angeregten Niveaus bei Vorhandensein von homöopolarer Bindung nach unten verschoben werden. Dies kommt dadurch zustande, dass die Coulombwechselwirkung zwischen den $3d$-Elektronen, wegen der mehr ausgebreiteten Ladungswolke, verkleinert wird.

Am Mn^{2+}, das die gleiche Konfiguration wie das Fe^{3+} besitzt, wurde die paramagnetische Resonanz im kubischen Felde ebenfalls untersucht[2])[54]). Für eine Umgebung mit Sauerstoffionen (MgO:Mn) können die Resultate jedoch nicht ohne weiteres verglichen werden, da das Mn^{2+} einen Ionenradius von 0,90 Å[45]) hat und deshalb eine ziemliche Verzerrung des Kristalls verursacht. Immerhin ist bemerkenswert, dass die Starkaufspaltung etwa 11mal kleiner ist als beim Fe^{3+}, was Low[46]) durch eine kleinere Spin-Bahn-Koppelungskonstante deutet. Diese geht ja bei einem Mechanismus der Form (12) mit einer hohen Potenz in die Starkaufspaltung ein. Eventuell dürfte ein Teil der kleineren Aufspaltung beim Mn^{2+}, wegen der nur zweifachen Ladung, auf eine im Vergleich zum Fe^{3+} kleinere σ-Bindung zurückzuführen sein.

Van Wieringen[4]) hat die paramagnetische Resonanz des Mn^{2+} in verschiedenen Kristallpulvern untersucht. Er konnte zeigen, dass sich bei zunehmender, kovalenter Bindung zu den Nachbaratomen der g-Faktor vergrössert und die Hyperfeinaufspaltungskonstante A verkleinert. Nach seinen Messungen ist der homöopolare Bindungsanteil für eine Umgebung von Sauerstoffatomen grösser, als derjenige für eine Umgebung von Wassermolekülen. Für das Zustandekommen der Hyperfeinaufspaltung an sich wurde seinerseits eine sehr kleine Zumischung der Konfiguration $3s$, $3d^5$, $4s$[28]), neuerdings ein Austausch der $3d$- mit den $1s$-, $2s$- und $3s$-Elektronen, vorgeschlagen[55])[56]). Die Möglichkeit, unsere Messungen durch solche Mechanismen besser, als mit kovalenter Bindung zu erklären, dürfen wir verneinen, da bei einer Zumischung von S-Zuständen nicht einzusehen ist, warum keine Verschiebung der 5 Feinstrukturlinien in der [111]-Richtung, dagegen aber eine solche in der [110]- und [100]-Richtung erfolgen soll.

Die Ursache der Linienbreite wollen wir zusammen mit den Messungen bei 80° K diskutieren. Das einzig in der [111]-Richtung sehr roh bestimmte Intensitätsverhältnis von 6:1,4:9:1,4:6 stimmt qualitativ mit dem am MgO:Fe^{3+} überein und weicht vom theoretischen Verhältnis von 8:5:9:5:8 erheblich ab. Ursache kann die kovalente Bindung sein. Bei Anwesenheit von starker σ-Bindung, das heisst wenn das $d\gamma$-Niveau wesentlich höher als das $d\varepsilon$-Niveau liegt, ist nur letzteres besetzt. Wir haben eine $(d\varepsilon)^5$-Konfiguration[57]), die im kubischen Felde eine Resonanzlinie $\mathfrak{H} = g\beta\vec{H}\vec{S}$ hat. Unser Fall, wo die äusseren Linien gegenüber der $+1/2 \leftrightarrow -1/2$-Resonanz abgeschwächt sind, würde einer Mischung der Konfigurationen $(d\varepsilon)^3$ $(d\gamma)^2$ und $(d\varepsilon)^5$ entsprechen. Als weitere Erklärung kommen Kristallgitterfehlstellen in Betracht, welche wegen dem nur dreiwertigen Eisenion im Kristall vorhanden sein können, damit dieser elektrisch neutral ist. Zum Beispiel kann ein dreiwertiges Ion, welches ein Sr^{2+} er-

setzt, ein O^{--}-Ion oder eine O-Leerstelle eingelagert sein. Solche den Fe^{3+}-Ionen genügend benachbarten Fehlstellen geben Anlass zu starken axialen Feldern, welche, entsprechend Gleichungen (9), die äusseren Linien so weit verschieben können, dass sie bei unserer Auswertung keinen Beitrag lieferten.

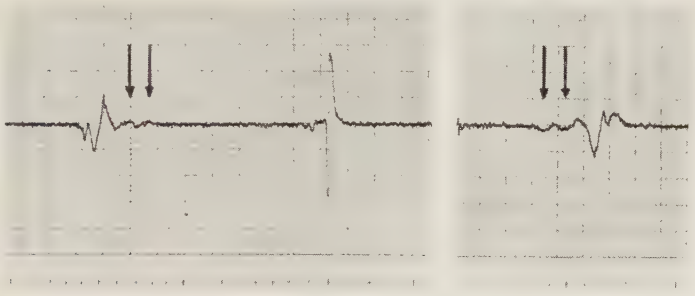
Resultate bei 80° K und ihre Erklärung

Hat das Magnetfeld die Richtung [111], so sind die 5 Feinstrukturlinien wie bei Zimmertemperatur gut aufgelöst. Mit dem gleichen g-Faktor und einem $1{,}114 \pm 0{,}003$ mal grösseren Starkaufspaltungsparameter $3a$ stimmte auch bei 80° K die Lage der Linien mit den theoretischen Werten bis zur zweiten Ordnung überein. Diese Messung wurde an einem Plättchen des Kristalls MP-1110-1 mit Orientierung E durchgeführt, das heisst die zu E parallele Magnetfeldrichtung R bildete einen Winkel von 3° mit der [1$\bar{1}$1]-Achse.

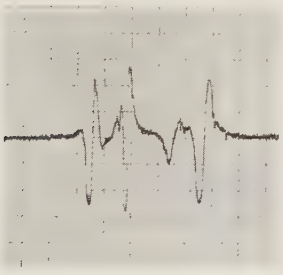
An einer Probe des Kristalls MP-1110-2 wurde die Variation der Feinstrukturlinien bei einer Drehung des konstanten Magnetfeldes parallel der (001)-Ebene studiert. Während das Bild in der [110]-Richtung demjenigen bei 300° K entspricht, spalten die äusseren Linien bei der Drehung des Magnetfeldes gegen die [100]- oder [010]-Richtung auf. Die Aufspaltung ist in den beiden letztgenannten Richtungen am grössten. Figur 9 zeigt die Schreiberaufnahmen für H in Richtung [100] und [110], wobei man speziell auf die Dublettaufspaltung der nur schwach sichtbaren $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 5/2$ Linien achte (Pfeile). Aus unserem Experiment geht klar hervor, dass im dünnen Plättchen 2 Sorten von Fe^{3+}-Ionen unterschieden werden können, wenn das Magnetfeld nicht parallel [110] ist. Daraus folgt, dass die beiden Sorten 2 verschiedenen zur [110]-Achse symmetrischen Kristallfeldern ausgesetzt sind. Da aber die Dublettaufspaltung klein ist gegenüber der kubischen Feinstruktur, sind die 2 Kristallfelder wenig voneinander verschieden. Beide setzen sich aus einer gleichen, grossen kubischen Feldkomponente zusammen, zu der nun wegen ihrer Symmetrie für das eine Kristallfeld eine tetragonale Komponente in der [100]-Richtung und für das andere eine tetragonale Komponente gleicher Grösse in der [010]-Richtung kommt. Das etwa 1 mm dünne, parallel einer (001)-Ebene geschnittene Kristallplättchen besteht demnach aus einzelnen tetragonalen Domänen mit c-Achsen in Richtung [100] und [010].

Die Dublettaufspaltung ist nach Gleichungen (9) für die $\pm 5/2 \leftrightarrow \pm 3/2$ Linien mit H parallel [100] gleich $6|D|$, nämlich $4|D|$ auf die eine Seite für die [100]-Domänen und $2|D|$ auf die andere Seite für die [010]-Domänen. Experimentell messen wir $6|D| = 49 \pm 2$ Gauss und erhalten so für

$|D| = (7{,}7 \pm 0{,}3) \times 10^{-4}$ cm $^{-1}$*). Wären die [001]-Domänen mit der gleichen Häufigkeit wie die [100]- und [010]-Domänen in unserem Kristallplättchen vorhanden, so müssten sich die Intensitäten des $+5/2 \leftrightarrow +3/2$ Dubletts wie 1:2 verhalten, während wir ein Verhältnis von 1:1 beobachten; auch wären dann die äusseren Linien in der [110]-Richtung aufgespalten. Für einen Kristall beliebiger Dicke und Orientierung, zum Beispiel E, sind Domänen in allen 3 Hauptrichtungen des Kristalls möglich. Beobachtet man jedoch die Resonanz in Richtung [111], erhält man keine weitere Aufspaltung der kubischen Feinstruktur, da die D-Terme in



H in Richtung [100]



H in Richtung [110]

Fig. 9
Paramagnetische Resonanz von Fe^{3+} im $SrTiO_3$ bei 80° K.

Gleichungen (9) wegen $3\cos^2\Theta - 1$ verschwinden, was im Einklang mit der zuerst geschilderten Messung ist.

Unsere Resultate bestätigen auf direkte Art die auf Grund von dielektrischen[10]) und strukturellen[18]) Messungen von GRÄNICHER gemachte Annahme, dass das $SrTiO_3$ unterhalb 100° K tetragonal ist. Diese tetragonale Phase ist nach ihm bei Abwesenheit von äusseren elektrischen Feldern bis zu tiefen Temperaturen nicht ferroelektrisch. Auf Grund unserer

*) Dieser Wert ist genauer, als der in [8]) angegebene.

Messung sind wir aber sicher, dass die Kristalle trotzdem aus Domänen bestehen. Deswegen dürfte der von GRÄNICHER vorgeschlagene Abkühleffekt bei tiefen Temperaturen durch Abschalten eines äusseren elektrischen Feldes, je nach der Grösse der Domänen, klein oder nicht beobachtbar sein, weil dabei nur die einen Domänen auf Kosten der anderen wachsen würden. Dies ist wohl auch dann der Fall, wenn der Kristall bei genügend hohen Feldstärken in eine ferroelektrische Phase übergeht.

Die Linienbreiten weisen bei 80° K kaum die Hälfte der bei 300° K gemessenen auf. Wegen des *S*-Grundzustandes des Fe^{3+}-Ions kann diese Temperaturabhängigkeit nicht von der Spin-Gitter-Relaxationszeit herrühren. Am naheliegendsten scheint uns der folgende Mechanismus zu sein: Die starr gedachten TiO_6- bzw. FeO_6-Oktaeder oszillieren in der hochsymmetrischen Phase (300° K) um ihren Mittelpunkt im Sinne von BUERGERS «displacive transformation of secondary coordination»[58]). Bei den Sauerstoffionen existieren bewegliche Gelenke (ionogene Bindung). In der tetragonalen Tieftemperaturphase findet eine solche thermische Bewegung kaum mehr statt. Durch die Oszillation in der hochsymmetrischen Phase wird das Magnetfeld relativ zum Fe^{3+} richtungsmoduliert, das heisst die Linien erhalten eine bestimmte, endliche Breite, und zwar müssen nach Gleichungen (9) die $\pm 5/2 \leftrightarrow \pm 3/2$ breiter als die $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$ und diese wieder breiter als die $+1/2 \leftrightarrow -1/2$ Linie sein. Das Modell von BUERGER ist im Falle des $SrTiO_3$ auch im Einklang mit der Theorie von MEGAW[19]), das heisst hohe Temperaturen: hochsymmetrische Phase – lose, ionogene Bindung bei den Sauerstoffatomen; demgegenüber tiefe Temperaturen: tiefsymmetrische Phase – feste, kovalente Bindung bei den *O*.

Beim MgO wird angenommen, dass Gitterfehlstellen, die von den Fe^{3+}-Ionen weit entfernt sind, schwache, axiale Felder hervorrufen, die den Hauptanteil der Linienbreiten ausmachen[2]). Dieselbe Annahme dürfte beim $SrTiO_3$ bei tiefen Temperaturen, wo die thermischen Rotationsschwingungen der TiO_6-Oktaeder vernachlässigbar sind, auch die wahrscheinlichste sein. Möglicherweise hat auch der kovalente Bindungsanteil des Fe mit den O einen Einfluss auf die richtungsabhängige Breite der äusseren Linien.

Die sehr hohe Temperaturabhängigkeit der DK bei 4,2° K und die damit verbundene Instabilität der Kavität bei dieser Temperatur verunmöglichte, selbst mit einer Probe von nur $^2/_{10}$ mm Dicke, eine Messung. Dadurch war eine Bestimmung des Vorzeichens von $3a$, durch den Intensitätsunterschied der Linien $+5/2 \leftrightarrow +3/2$ und $-5/2 \leftrightarrow -3/2$, und somit auch von D, nicht möglich.

VI. Schluss

Herrn Prof. Dr. G. Busch möchte ich an dieser Stelle für die freundliche Ermutigung zur vorliegenden Arbeit und die mir dabei gewährte Unterstützung herzlich danken. Ferner danke ich dem Schweizerischen Nationalfonds für die Gewährung finanzieller Mittel zur Durchführung dieser Arbeit. Mein besonderer Dank gilt auch Herrn Dr. A. Linz von der National Lead Comp. N.Y. für die Zurverfügungstellung der Einkristalle, Herrn Dr. H. Gränicher für die Orientierung derselben und die vielen interessanten Diskussionen über das dielektrische und strukturelle Verhalten der Titanate. Sehr wertvoll waren die theoretischen Kolloquien mit den Herren Prof. Dr. H. Schwartz, Dr. Ch. Enz und Dr. H. J. Gerritsen. Von grossem Wert war auch die kritische Durchsicht eines Teils dieser Arbeit durch Herrn Prof. Dr. R. Lacroix. Ebenso bin ich Herrn Dr. W. Neu für die Anregungen beim Bau des Mikrowellenteils der Apparatur zu bestem Dank verpflichtet.

Literaturverzeichnis

[1]) K. D. Bowers und J. Owen, Rep. Progr. Phys. *18*, 304 (1955).
[2]) W. Low, Phys. Rev. *105*, 793 (1957).
[3]) R. Lacroix und Ch. Ryter, 6e Colloque Ampère, Arch. Sci. (Genève) *10*, 132 (1957).
[4]) J. S. van Wieringen, Faraday Soc. Disc. *19*, 118 (1955).
[5]) W. Low, Phys. Rev. *105*, 801 (1957).
[6]) W. Low, Bull. Am. Phys. Soc. II *1*, S11 (1956).
[7]) H. Gränicher und K. A. Müller, Nuovo Cimento N. 3 Suppl. *6*, Serie X, 1216 (1957).
[8]) K. A. Müller, 6e Colloque Ampère, Arch. Sci. (Genève) *10*, 130 (1957).
[9]) R. de L. Kronig und C. J. Bouwkamp, Physica *6*, 290 (1939).
[10]) H. Gränicher, Helv. Phys. Acta *29*, 210 (1956).
[11]) I. Naray-Szabo, Müegyetemi Kozlemenyek *1*, (1947).
[12]) H. P. Rooksby, Nature *155*, 484 (1945).
[13]) S. B. Lewin, N. J. Field, F. M. Plock und L. Merker, J. Opt. Soc. *45*, 737 (1955).
[14]) L. Merker und L. E. Lynd, U. S. Patent 2,628,156 (10. Februar 1953).
[15]) J. A. Noland, Phys. Rev. *94*, 724 (1954).
[16]) A. Linz, Phys. Rev. *91*, 753 (1953).
[17]) J. F. Youngblood, Phys. Rev. *98*, 1201 (1955).
[18]) H. Gränicher und O. Jakits, Nuovo Cimento *11*, 480 (1954).
[19]) H. D. Megaw, Acta Cryst. *5*, 739 (1952) und *7*, 187 (1954).
[20]) R. M. Cotts und W. D. Knight, Phys. Rev. *96*, 1285 (1954).
[21]) J. C. Slater, Phys. Rev. *78*, 748 (1950).
[22]) H. Gränicher, Nuovo Cimento N. 3 Suppl. *6*, Serie X, 1220 (1957).
[23]) H. A. Bethe, Ann. Phys. *3*, 133 (1929).
[24]) J. H. van Vleck und W. G. Penney, Phil. Mag. *17*, 961 (1934).
[25]) P. J. W. Debye, Ann. Phys. (*5*) *32*, 85 (1938).

[26]) M. H. L. Pryce, Proc. Phys. Soc. *A*, *63*, 25 (1950).
[27]) M. H. L. Pryce, Phys. Rev. *80*, 1107 (1950).
[28]) A. Abragam und M. H. L. Pryce, Proc. Roy. Soc. *A*, *205*, 135 (1951).
[29]) B. Bleaney, Physica *17*, 175 (1951).
[30]) B. Bleaney und D. J. E. Ingram, Proc. Roy. Soc. *A*, *205*, 336 (1951).
[31]) K. W. H. Stevens, Proc. Phys. Soc. *A*, *65*, 209 (1952).
[32]) B. Bleaney und K. W. H. Stevens, Rep. Progr. Phys. *16*, 108 (1953).
[33]) B. Bleaney und R. S. Ternam, Proc. Roy. Soc. *A*, *233*, 1 (1954).
[34]) H. C. Torrey, E. M. Purcell und R. V. Pound, Phys. Rev. *69*, 680 (1946).
[35]) C. Kittel und J. M. Luttinger, M.I.T. Technical Report Nr. 49 (10. September 1947).
[36]) E. E. Schneider und T. S. England, Physica *17*, 221 (1951).
[37]) R. T. Weidner und C. A. Whitmer, Rev. Sci. Instr. *23*, 75 (1952).
[38]) J. M. Hirshon und G. K. Fraenkel, Rev. Sci. Instr. *26*, 34 (1955).
[39]) G. Feher, Bell Syst. Techn. J. *34*, 449 (1957).
[40]) M. A. Schuster, Rev. Sci. Instr. *22*, 254 (1951).
[41]) B. Natterer, Diplomarbeit (1957), unveröffentlicht.
[42]) W. E. Lamp jr. und R. C. Retherford, Phys. Rev. *81*, 222 (1951).
[43]) F. Kneuenbühl, Diplomarbeit (1955), unveröffentlicht.
[44]) K. A. Müller, 7e Colloque. Ampère, Arch. Sci. Genève (1958), demnächst.
[45]) V. M. Goldschmidt, Internationale Tabellen zur Bestimmung von Kristallstrukturen (Berlin 1935), Vol. 2.
[46]) W. Low, Proc. Phys. Soc. *B*, *69*, 1169 (1956).
[47]) P. P. Ewald und C. Hermann, Strukturbericht 1913 bis 1928.
[48]) A. W. Hornig, E. T. Jaynes und H. E. Weaver, Phys. Rev. *96*, 1703 (1954).
[49]) D. Polder, Physica *9*, 709 (1942).
[50]) W. Low, Phys. Rev. *105*, 792 (1957).
[51]) R. Lacroix, Helv. Phys. Acta *30*, 478 (1957).
[52]) C. A. Hutchison jr., B. R. Judd und D. F. D. Pope, Proc. Phys. Soc. *B*, *70*, 514 (1957).
[53]) J. Owen, Proc. Roy. Soc. *A*, *227*, 183 (1955).
[54]) L. M. Matarrese und Ch. Kikuchi, Phys. Chem. Solids *1*/*2*, 117 (1956).
[55]) J. H. Wood und G. W. Pratt, Phys. Rev. *107*, 995 (1957).
[56]) V. Heine, Phys. Rev. *107*, 1002 (1957).
[57]) K. W. H. Stevens, Proc. Roy. Soc. *A*, *219*, 542 (1953).
[58]) M. J. Buerger, Phase Transformations in Solids, J. Wiley & Sons 183 (1951).

Alpha instabile angeregte Zustände des Be^8 Kerns

von **V. Meyer** und **H. H. Staub**

Physikalisches Institut der Universität Zürich)

(11. I. 1958)

Summary. The energy distribution of α particles resulting from the decay of Be^8 following the reaction $Li^7(p,\gamma)Be^8$ has been measured with a magnetic spectrograph in coincidence with the γ-rays and also singly. The well-known first excited state appears at a reduced energy of 2·8 MeV with a width of 1·9 MeV. No evidence of a fine structure of this level could be found. On the high energy side, for excitation energies between 4 and 9 MeV, no levels are present with intensities of more than 2% of the total number of excited Be^8 nuclei.

Einleitung

Die Energiezustände des instabilen Be^8-Kerns, dessen einfache Konstitution besonders leicht einer Interpretation durch das α-Modell zugänglich sein sollte, sind Gegenstand mehrerer Untersuchungen gewesen, deren Resultate allerdings zum Teil sehr widersprechend sind. Sicher gestellt ist der Grundzustand der um 0,096 MeV instabil gegen α-Zerfall ist, sowie ein Zustand bei 2,9 MeV Anregungsenergie mit $I = 2^+$, der also ebenfalls durch direkten α-Übergang zerfällt. Daneben wurden aber in neueren Arbeiten bei der Untersuchung verschiedener zu Be^8 führenden Reaktionen Niveaus bei 2,2; 3,4; 4,0; 4,06; 4,9; 5,31; 6,8; 7,51 und 9,0 MeV gefunden[1)2)]. Eine Übersicht über die neueren Ergebnisse zeigt Tabelle 1, sowie das Niveau-Diagramm in Figur 1. Die Existenz dieser Niveaus und insbesondere deren geringe Breite lassen sich nur schwer und unter komplizierten Modifikationen des α-Modells erklären. Bei allen diesen Niveaus handelt es sich um solche, die direkt α-instabil sind, das heisst dass wegen der Bosestatistik der α-Teilchen diese Niveaus nur geraden Spin und gerade Parität besitzen können.

In der vorliegenden Arbeit wurde nach solchen α-instabilen Niveaus des Be^8 gesucht, wozu die Reaktion: ${}_3Li^7(p,\gamma\ Be^8)2\,\alpha$ benützt wurde. Diese Reaktion, die bekanntlich eine Resonanz von 12 KeV Breite bei 441 KeV Protonenenergie besitzt, ist abgesehen von der Emission eines γ-Quants eine Zweiteilchen-Reaktion. Die Verbreiterung scharfer α-Gruppen durch den γ-Rückstoss ist gering und ein kontinuierliches

*

Tabelle I

Jahr	Reaktion	Art der gemessenen Teilchen und Messmethoden	Gefundene Zustände	Referenz
1948	$Li^7(p,\gamma)Be^8$	γ-Spektrometer	2,9	4
1950	$Li^7(p,\gamma)\alpha\alpha$	α-Magnet. Analyse	3,03	5
1953	$B^{11}(\gamma,t)\alpha\alpha$	t-Photoplatten	2,2; 2,9; 3,4	6
	$B^{10}(\gamma,d)\alpha\alpha$	d-Photoplatten	4,0; 4,9; 6,8	
1953	$Li^7(p,\gamma)\alpha\alpha$	α-Reichweite	2,9; 4,09	7
		$\alpha\gamma$-Koinzidenz	5,3; 7,41	
1953	$B^{11}(p,\alpha)\alpha\alpha$	α-Magnet. Analyse	2,9	2
1955	$Li^8(\beta)\alpha\alpha$	α-Magnet. Analyse	2,9	8
1955	$C^{12}(\gamma,\alpha)\alpha\alpha$	α-Photoplatten	2,9; 4,0; 9,0	9
1956	$Li^6(He^3p)Be^8$	p NaI Szintillator	2,9	10
1956	$Li^7(p,\gamma)\alpha\alpha$	α-Magnet. Analyse	2,9	11
1956	$\alpha(\alpha,\alpha)\alpha$	Elastische Streuung	2,9	16
1956	$\alpha(\alpha,\alpha)\alpha$	Elastische Streuung	2,9	17

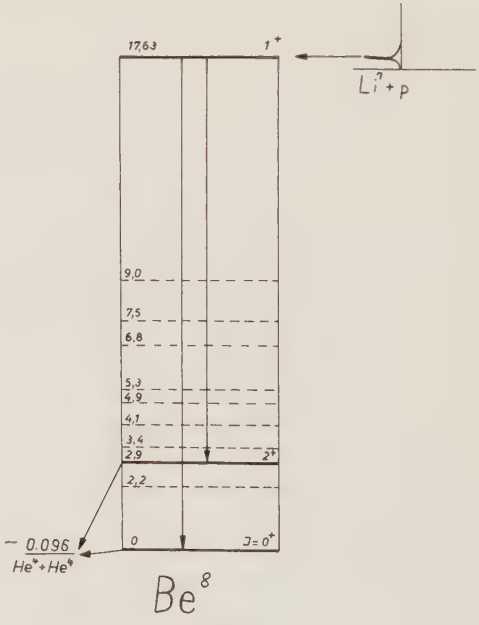


Fig. 1

α-Spektrum tritt nicht auf. Aus der isotropen Winkelverteilung der γ-Strahlung und der Streuung von Protonen an Li^7 weiss man, dass der bei 441 KeV resonant gebildete Compoundzustand durch p-Einfang des

Protons mit Triplet zu Quintet-Intensitätsverhältnis 1:5 erfolgt und dass der Zustand den Spin $I = 1^+$ besitzt. Der Übergang zu den α-instabilen Zuständen erfolgt durch magnetische Dipolstrahlung, elektrische Quadrupolstrahlung usw. zu Niveaus mit Spin 0^+, 2^+ usw.

Methode und Apparatur

Figur 2 zeigt schematisch den Aufbau der Apparatur. Die Energie der von der Target ausgehenden α-Teilchen wurde in einem magnetischen Sektorspektrographen mit 110° Ablenkung, 29,5 cm mittlerem Radius und Einfachfokussierung gemessen. Bild und Objektpunkt liegen 18,7 cm von den betreffenden Polenden entfernt. Der räumliche Annahmewinkel ist $1{,}2 \times 10^{-4}$. Bei einer Aus- und Eintrittsspaltbreite von 0,5 cm beträgt die Energieauflösung $E/\Delta E = 48$. Bei der maximalen zur Messung gelangenden α-Energie von 4,4 MeV ist die instrumentelle Breite also noch

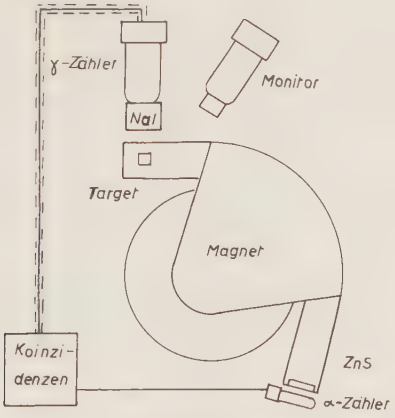


Fig. 2

kleiner als 0,1 MeV. Die Feldmessung erfolgte durch Protonresonanz und der Erregerstrom wurde durch eine konventionelle Stabilisierung auf ca. 0,1% konstant gehalten. Die Eichung des Spektrographen erfolgte mit den 3 α-Gruppen der Reaktion $F^{19}(p,\alpha,\gamma)O^{16}$ und mit an Cu gestreuten Protonen, die die Resonanzenergien der Fluorreaktion bei 871,3 KeV und der Li^7-Reaktion bei 441,2 KeV besitzen. Die Resultate zeigt Figur 3.

Die Messung der Energieverteilung der α-Teilchen der Reaktion $Li^7(p,\gamma,Be^8)2\,\alpha$ wird ausserordentlich erschwert, weil die gleichzeitig auftretende, nicht resonante Reaktion $Li^6(p,\alpha)He^3$ bei der Resonanzenergie von 441 KeV energiescharfe α-Teilchen und He^3 liefert, deren Impulse ziemlich genau mit demjenigen der α-Teilchen übereinstimmen, die vom

Zerfall des breiten 2,9-MeV-Niveaus des Be^8 herrühren. Da die Li^6-Reaktion im Gegensatz zur betrachteten Li^7-Reaktion einen sehr grossen Wirkungsquerschnitt besitzt, tritt im α-Spektrum bei etwa 1,8 MeV auch bei geringer Li^6-Konzentration eine intensive Linie auf. Um ihren störenden Einfluss zu vermeiden, wurde daher neben dem direkten α-Spektrum dasjenige der α-Teilchen gemessen, die mit den, dem α-Zerfall des Be^8 vorgängigen γ-Quanten koinzident sind und ausserdem als Targetmaterial Li^6 verarmtes Li(Li^6-Gehalt 0,1%) verwendet.

Die Koinzidenzanordnung beseitigt zwar alle nicht von der betrachteten Reaktion herrührenden Partikel, stellt aber anderseits wegen der starken Intensitätsabnahme hohe Anforderungen an die Registrierapparatur. Der γ-Zähler befindet sich in unmittelbarer Nähe der Target unter 90° gegen die Einfallsrichtung der Protonen. Seine Einzelzählrate ist hoch und erfordert daher eine kurze Auflösungszeit für den Koinzidenzkreis. Die Registrierung der γ-Quanten erfolgt in einem 3,8×3,8 cm

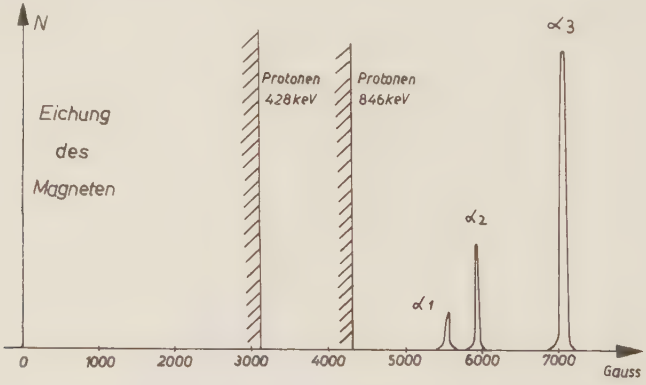


Fig. 3

messenden NaI(Tl)-Kristall mit 5819 Vervielfacher. Die mit etwa 0,2 μs ansteigenden Impulse werden nach Durchlaufen eines Verstärkers mit einer Anstiegszeit von 5 mμs und Verstärkungsfaktor 10 auf gleiche Grösse und durch ein kurzgeschlossenes Laufzeitkabel auf eine Pulsdauer 40 mμs begrenzt. Mit demselben Kabel wurden die Impulse des α-Zählers am Ausgang des Spektrographen nach Passierung einer Verstärkerstufe geformt. Der α-Detektor besteht aus einem dünnen, aus einer Alkoholsuspension auf Glas gefällten Niederschlag von ZnS(Ag)-Pulver (RCA Z 20 A) von 7 mg/cm² Dicke. Der Glasträger ist über einen Lichtleiter mit einem Vervielfacher 931 A verbunden. Diese Vervielfacher sind relativ unempfindlich gegen Streumagnetfelder und lassen sich mit Spannungen bis zu 1800 V betreiben. Da die kurzlebige Lichtkomponente des ZnS 40 mμs beträgt, beträgt, wird dieser Teil des Impulses durch die nach-

folgende Impulsverkürzung nicht verkleinert. Die Laufzeit der α-Teilchen durch den magnetischen Spektrographen beträgt

$$T = \frac{136}{E_\alpha \text{ MeV}} \cdot \text{m}\mu\text{sec}$$

Dies bedingt die Einführung einer entsprechenden Verzögerung im γ-Kanal durch ein charakteristisch geschlossenes Laufzeitkabel, wodurch die Gleichzeitigkeit innerhalb der Auflösungszeit des Koinzidenzkreises erreicht wird. Für den gesamten Energiebereich genügten 2 Kabel mit 120 mμs für $0{,}85 \leqslant E_\alpha \leqslant 2{,}8$ MeV und 80 mμs für $1{,}4 \leqslant E_\alpha \leqslant 5$ MeV. Der schnelle Koinzidenzkreis diskrimiert durch eine vorgespannte Diode

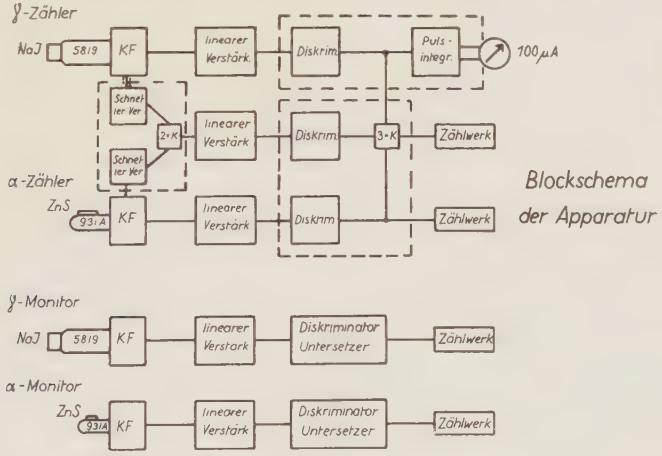


Fig. 4a

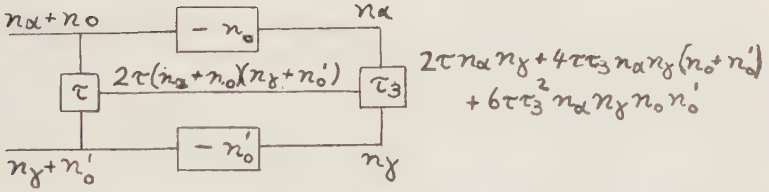


Fig. 4b

Koinzidenzimpulse der doppelten Höhe gegen Einzelimpulse von einfacher Höhe. Schliesslich werden diese schnellen Koinzidenzimpulse, sowie die Einzelimpulse der α- und γ-Zähler nach konventionellen Verstärkern einer 3fachen Koinzidenzstufe mit Auflösungszeit τ_3 zugeführt Das Blockschema der Apparatur zeigt Figur 4*a*. In Figur 4*b* sind die Verhältnisse zur Bestimmung der Anzahl der zufälligen Koinzidenzen skiz-

ziert. Es mögen in den α- und γ-Kanälen $n_\alpha + n_0$ bzw. $n_\gamma + n_0'$ Impulsraten auftreten, wobei zwischen den beiden keinerlei Korrelation bestehen möge, wie das zum Besipiel für die Impulse der $Li^6(p,\alpha)He^3$-Reaktion der Fall ist. n_0 und n_0' sind Rauschimpulse, die in den langsamen Kanälen wegdiskriminiert werden. Sei τ die Impulsdauer im schnellen, τ_3 diejenige im Dreifachkoinzidenzkreis. Unter Berücksichtigung der Korrelation von gewissen Zweifachkoinzidenzen mit Einzelimpulsen (zum Beispiel ist eine zufällige zweifache α-γ-Koinzidenz koinzident mit den einzelnen α- und γ-Impulsen), erhält man für die Zahl der zufälligen Dreifachkoinzidenzen:

$$n''' = 2\,\tau\,n_\alpha\,n_\gamma + 4\,\tau\,\tau_3\,n_\alpha\,n_\gamma(n_0 + n_0') + 6\,\tau\,\tau_3^2\,n_\alpha\,n_\gamma\,n_0\,n_0'\,.$$

Ihre Zahl ist von n_0 und n_0' unabhängig, wenn

$$2\,\tau_3(n_0 + n_0') + 3\,\tau_3^2\,n_0\,n_0' \ll 1.$$

Mit $\tau_3 = 0{,}5\ \mu s$ ist diese Bedingung für die verwendete Apparatur erfüllt und die Zahl der zufälligen Dreifachkoinzidenzen $n''' - 2\,\tau\,n_\alpha\,n_\gamma$ kann aus den Einzelzählraten ermittelt werden. Die Bestimmung von τ erfolgte durch zwei unabhängige Methoden. Bei fester Einzelimpulsrate wurde die Koinzidenzrate als Funktion der Verzögerungszeit τ_γ der γ-Pulse gemessen. Die Halbwertsbreite der erhaltenen Verteilung ist gleich 2τ. Bei der zweiten Methode wurde am Eingang des α-Spektrographen eine Mylarfolie von 9 mg/cm² angebracht, die sämtliche Partikel niedriger Energie abstoppte und eine grosse Zahl von auf 2,2 MeV abgebremsten α-Teilchen der direkten Reaktion $Li^7(p,\alpha)\alpha$ dem α-Zähler zuführte. Ihre Koinzidenzen mit den γ-Impulsen sind rein zufällig. Ist ihre Rate K_Z, diejenige der Einzelkanäle n_α bzw. n_γ, so ist

$$\tau = \frac{K_Z}{2\,n_\alpha\,n_\gamma}\,.$$

Die nach den beiden Methoden gemessenen Werte stimmten immer überein.

Als Monitor für die Intensität des primären Protonstrahls diente ein ZnS-α-Detektor mit 931 A Vervielfacher, der die durch ein Fenster von 5 mg/cm² unter 135° gegen die Einfallsrichtung der Protonen austretenden, nichtresonanten, langreichweitigen α-Teilchen registrierte.

Um die Energie der zu messenden α-Teilchen nicht zu verfälschen, muss die Energie der einfallenden Protonen, bei einer relativ zur Resonanzbreite dicken Target knapp über dem Resonanzwert liegen (Ausbeute gleich $^3/_4$ der Sättigungsausbeute). Durch die unvermeidliche Ablagerung von Fremdmaterial sinkt im Laufe der Zeit die Ausbeute des resonanten Prozesses. Bei den Messungen wurde mit Hilfe eines separaten γ-Strahlmonitors [NaI(Tl)-Kristall mit 5819-Vervielfacher] die reso-

nante γ-Intensität gemessen. Die Targets wurden im Vakuum aufgedampft und solange benützt, bis die γ-Intensität bei konstanter Primärenergie der Protonen infolge Ablagerung auf die Hälfte sank. Dies ergibt für die Protonen eine Energieverminderung um 8,5 KeV und für die austretenden α-Teilchen eine solche von etwa 20 KeV. Bei 5 μAmp. Protonenstrom konnte eine Target 3 bis 5 h benützt werden.

Bei der Messung des α-Energiespektrums der Einzelimpulse zeigte es sich, dass durch Streuung an den Wänden der Vakuumkammer des Spektrographen eine sehr grosse Zahl nichtresonante, hochenergetische α-Teilchen auf den ZnS-Szintillationsdetektor gelangen. Für die Koinzidenzmessungen sind sie belanglos, dagegen sind sie für das Einzelspektrum störend, da sie wegen der starken Nichtlinearität des ZnS-Detektors Impulse von fast gleicher Grösse ergeben wie die α-Teilchen kleinerer Energie. Für die Einzelmessung wurde daher der ZnS-Detektor durch einen 0,5 mm dicken CsI(Tl)-Kristall ersetzt. Seine Lichtausbeute ist ziemlich linear und damit konnten die hochenergetischen, gestreuten α-Teilchen durch ihre grössere Impulshöhe durch einen nach oben begrenzten Kanal ausgeschieden werden.

Resultate. Die Zahl der α-γ-Koinzidenzen wurde als Funktion des Magnetstroms gemessen, wobei die Impulszahl des γ-Monitors zur Normierung auf gleiche Anzahl Reaktionen diente. In derselben Weise wurde das Spektrum der α-Einzelimpulse erhalten.

Zunächst wurden die in Funktion des Magnetstromes gemessenen Verteilungen auf die Energie der α-Teilchen im Laborsystem umgerechnet. Die Apertur des Spektrographen ist unabhängig von der Energie, der akzeptierte Energiebereich ist daher $\Delta E = E/R$ wo R das von E unabhängige Auflösungsvermögen darstellt. Aus der beim Strom J gemessenen Anzahl $Z(J)$ ergibt sich die Energieverteilung durch $N(E) = \text{const.}\ Z(J)/E$. Die gemessene Koinzidenzzahl musste sodann für folgende Effekte korrigiert werden:

1. Zufällige Koinzidenzen. Ihre Anzahl N_Z wurde aus den Einzelimpulsraten n_α und n_γ, der Auflösungszeit τ und der Messzeit T ermittelt: $N_Z = 2\, n_\alpha\, n_\gamma\, \tau T$ und betrug 3 bis 10% der wahren Koinzidenzzahl.

2. Bei kleinen Energien (~ 1 MeV) tritt das α-Teilchen mit grosser Wahrscheinlichkeit infolge Elektroneneinfangs als He^+-Ion aus dem Targetmaterial aus. Seine magnetische Steifigkeit entspricht daher einem α-Teilchen vierfacher Energie. Dies bedeutet einen Zählverlust bei den niedrigen Energien. Bei den Koinzidenzmessungen täuschen diese Teilchen aber keine höher energetischen α's vor, da sie infolge der langen Flugzeit bei der Einstellung des Spektrographen auf die vierfache Energie ausserhalb der Koinzidenzzeit registriert werden. Der Anteil einfach geladener He^+-Teilchen erreicht bei jeder Energie nach Durchlauf sehr

kleiner Materialdicken und fast unabhängig vom Material, einen konstanten, nur von der Energie des α-Teilchens abhängigen Wert, wie dies von BRIGGS[12]) gefunden wurde. Figur 5*a* zeigt das Verhältnis

$$\frac{\alpha^{++} + \alpha^{+}}{\alpha^{++}}$$

als Funktion der α-Energie. Mit diesem Faktor wurden die gemessenen Werte multipliziert.

3. Die Energie des γ-Quants variiert mit der Energie des zu ihm koinzidenten α-Teilchens. Da die Ansprechwahrscheinlichkeit des γ-Zählers

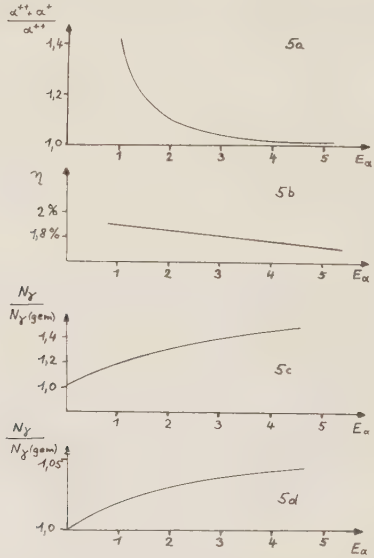


Fig. 6

energieabhängig ist, muss hierfür eine Korrektur angebracht werden. Sie wurde rechnerisch ermittelt unter der Annahme, dass die Ansprechwahrscheinlichkeit durch den Absorptionskoeffizienten $\mu(E_\gamma)$ und die Kristalldicke d gegeben ist.

$$\eta(E_\gamma) = \text{const}\, e^{-\mu(E_\gamma)\cdot\frac{d}{2}}\cdot\mu(E_\gamma) \quad \text{Näherungsweise ist:} \quad E_\gamma \approx E^* + E_0 - 2E_\alpha'$$

wo E^* die Anregungsenergie des γ-strahlenden Niveaus, E_0 die Zerfallsenergie des Grundzustandes und E_α' die Energie jedes α-Teilchens im Ruhsystem des Be^8 bedeutet. Diese Korrektur ist in Figur 5*b* dargestellt.

4. Das Streufeld des α-Spektrographen beeinflusst die Zählraten der α- und γ-Zähler, sowie des γ-Monitors, indem die Ausgangsimpulshöhen

der Vervielfacher verändert werden. Für die α-Zähler ist die Korrektur kleiner als $0{,}5\%$ und kann vernachlässigt werden. Für die γ-Zähler wurde die Grössenänderung der Impulse an der Photospitze der Cs^{137}-γ-Strahlung (0,661 MeV) in Funktion des Magnetstromes gemessen. Die beim Feld Null gemessene Impulshöhenverteilung kann unter der Annahme der gleichen relativen Verschiebung wie bei Cs berechnet und damit für das gegebene Diskriminationsniveau die Zählratenkorrektur ermittelt werden. Für den γ-Zähler und den γ-Monitor sind die Verhältnisse der wahren zur gemessenen Zählrate in den Figuren 5*c* und 5*d* dargestellt. Bei der Messung des Spektrums der α-Einzelimpulse treten ausser diesen Korrekturen noch zwei weitere auf, nämlich:

5. Die einfach geladenen α-Teilchen der Energie E_α werden bei einer der vierfachen Energie entsprechenden Magnetfeldeinstellung registriert, vorausgesetzt, dass sie Impulse über dem Diskriminationsniveau des α-Zählers liefern. Dieses liegt bei 0,9 MeV. Für Energien oberhalb 3,6 MeV beträgt die wahre Anzahl der α-Impulse:

$$N_\alpha(E_\alpha) = N_g(E_\alpha) - N_\alpha(E_{\alpha/4}) \left(\frac{\alpha^+}{\alpha^+ + \alpha^{++}}\right)_{E_{\alpha/4}}$$

und kann damit aus der gemessenen Verteilung $N_g(E_\alpha)$ mit Hilfe der Korrektur 5*a* bestimmt werden.

6. Der Untergrund des γ-Monitors ist vernachlässigbar klein, derjenige des α-Zählers ist zeitlich konstant und vom Magnetfeld und der Protonenstrahlintensität unabhängig, da er vorwiegend von α-Teilchen aus der Wand der Spektrographenkammer in unmittelbarer Nähe des α-Zählers stammt. Er betrug $0{,}420 \pm 0{,}005$ Impulse pro Minute, was an den Enden des α-Spektrums bis zu 40% der gemessenen Zahl ausmacht.

Die Anregungsenergie E_B des Be-Kernes ergibt sich aus der Energie E_α' der α-Teilchen im Ruhsystem des α-zerfallenden Be-Kernes aus der Beziehung

$$E_\alpha' = \frac{E_B + E_0}{2}.$$

Die unter 90° gegen die Einfallsrichtung der Protonen emittierten α-Teilchen besitzen wegen des Rückstosses durch das energetische γ-Quant auch bei scharfer γ-Energie eine zwischen Grenzen kontinuierliche Energieverteilung. Es seien $\vec{p}_p, \vec{p}_\gamma, \vec{p}_B, \vec{p}_{\alpha 1}, \vec{p}_{\alpha 2}$ die Impulse des einfallenden Protons, γ-Quants, des α-zerfallenden Be und der beiden α-Teilchen im Laborsystem. Dann gilt offenbar (Fig. 6) $\vec{p}_B = \vec{p}_p - \vec{p}_\gamma = \vec{p}_{\alpha 1} + \vec{p}_{\alpha 2}$ und entsprechend für die Energiebilanz wenn T_B die kinetische Energie des α-zerfallenden Be ist:

$$E_B + E_0 + T_B = E_{\alpha 1} + E_{\alpha 2} = 2\,E_\alpha' + T_B.$$

Wird das γ-Quant unter einem Polarwinkel ϑ im Laborsystem gegen die

Protoneinfallsrichtung und unter einem Azimuthalwinkel φ gegen die durch das beobachtete α-Teilchen und das Proton bestimmte Ebene emittiert, so ist unter Vernachlässigung höherer quadratischer Glieder in p_p und p_γ:

$$E_\alpha = E_\alpha' - \frac{p_p^2 + p_\gamma^2}{8\, m_\alpha} + \frac{p_\gamma^2 \sin^2\vartheta \cos^2\varphi}{4\, m_\alpha} - \frac{p_p\, p_\gamma \cos\vartheta}{4\, m_\alpha}$$
$$\pm \frac{p_\gamma}{2\, m_\alpha} \sin\vartheta \cos\varphi \sqrt{2\, m_\alpha\, E_\alpha'}$$

Die Emission der γ-Quanten erfolgt jedenfalls nach dem Grund- und ersten angeregten Zustand isotrop. Die Glieder in p_γ^2 können vernachlässigt werden und $p_\gamma = E_\gamma/c$ darf als richtungsunabhängig angenommen werden. Damit ergibt sich für eine scharfe γ-Energie eine homogene Verteilung der beobachteten α-Teilchen zwischen den Grenzen:

$$E_{\alpha\,\min}^{\max} = E_\alpha' - \frac{m_p}{4\, m_\alpha} T_p \pm E_\gamma \sqrt{\frac{E_\alpha'}{2\, m_\alpha\, c^2} + \frac{m_p}{m_\alpha} \frac{T_p}{8\, m_\alpha\, c^2}} = E_{\alpha_0} \pm \Delta E_\gamma$$

symmetrisch um den Wert

$$E_{\alpha 0} = E_\alpha' - \frac{m_p}{4\, m_\alpha} T_p, \text{ wobei } T_p = \frac{p_p^2}{2\, m_p} \text{ ist.}$$

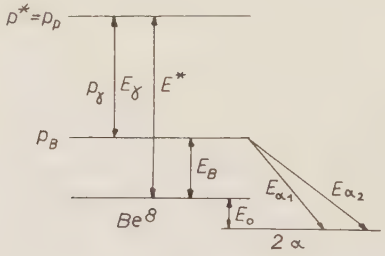


Fig. 6.

Durch das endliche Auflösungsvermögen des Spektrographen entsteht eine zusätzliche Verbreiterung ΔE_R. Näherungsweise dürfen die beiden Verbreiterungen quadratisch addiert werden, so dass für eine feste γ-Energie die beobachtete α-Gruppe eine Energiebreite

$$\Delta E_\alpha = \sqrt{\Delta E_\gamma^2 + \Delta E_R^2}$$

besitzt. Sie beträgt bei $E_\alpha = 1{,}5$ MeV, $\Delta E_\alpha = 0{,}4$ MeV, bei $E_\alpha = 3$ MeV, $\Delta E_\alpha = 0{,}48$ MeV. Bei der Messung der α-γ-Koinzidenzen gelangt nur ein kleiner Bruchteil des gesamten räumlichen Winkels der Quanten zum γ-Zähler, wodurch die γ-Verbreiterung stark reduziert wird. Die gesamte Breite beträgt daher bei den Koinzidenzmessungen nur $^1/_4$ der obigen Werte. Da sicher keine α-stabilen Zustände mit einer Breite unterhalb einiger 100 KeV zu erwarten sind, stellt die Verteilung $N(E_\alpha)$ ein getreues Abbild der Verteilung $N'(E_\alpha')$ dar.

Das auf die Anregungsenergie bzw. E_α' vermöge der Beziehung $E_\alpha' = E_{\alpha 0} + {}^1/_{16}\, T_p$ umgerechnete Koinzidenzspektrum ist in Figur 7 wiedergegeben. Es enthält insgesamt 1300 Koinzidenzen in 50 KeV-Intervallen, die das Resultat von total 120 Meßstunden darstellen. Figur 8

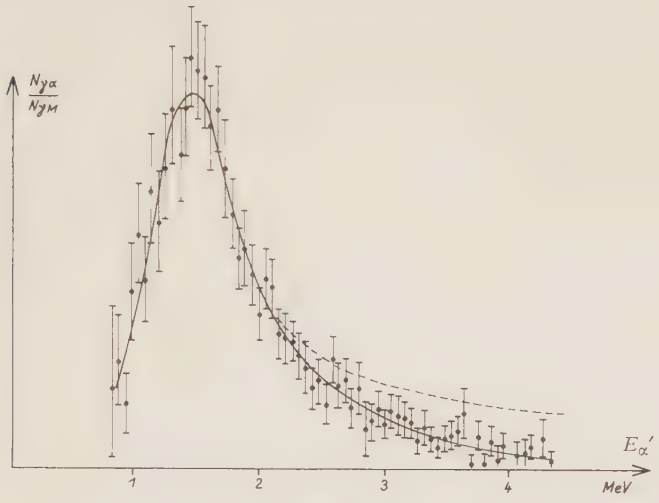


Fig. 7

zeigt das entsprechende Spektrum der Einzelimpulse. Die punktiert im Koinzidenzspektrum eingezeichnete Kurve stellt das Spektrum der Einzelimpulse auf gleiche Totalzahl normiert dar.

Diskussion

Das Koinzidenzspektrum Figur 7 zeigt klar, dass der breite Zustand bei $E_B = 2\, E_\alpha' - E_0 = 2{,}9$ MeV keinerlei scharfe Komponenten enthält oder eine Struktur von der Grössenordnung der Auflösung $\Delta E_\alpha = 0{,}1$ MeV aufweist. Für $E_\alpha' > 2{,}5$ MeV reicht die statistische Genauigkeit der Messungen nicht, um auch relativ intensive Zustände mit Sicherheit auszuschliessen. Das Einzelspektrum (Fig. 8) dagegen gibt keinen brauchbaren Aufschluss im Energiebereich von 1 bis 2 MeV, da dort trotz der Verwendung Li^6 verarmter Targets die Gruppen He^3 und He^4 der Reaktion $Li^6(p,\alpha)He^3$ alles überdecken. Diese Linie ist scharf, ihre Breite von 0,2 MeV wird fast ausschliesslich durch den Energieverlust der α-Teilchen in der Target verursacht. Die verwendeten Targetdicken gaben für Protonen von 0,4 MeV, Energieverluste von 30 bis 80 KeV, was einen Energieverlust von 120 bis 320 KeV für α-Partikel von 1,8 MeV bedeutet. Dementsprechend sollte das Linienmaximum von 1,85 auf 1,73 MeV verschoben sein, in guter Übereinstimmung mit dem beobachteten Wert

1,70 MeV. Im Energiebereich $E_\alpha' > 2$ MeV zeigt das Einzelspektrum, dessen Punkte in Intervalle von 0,1 MeV zusammengefasst sehr kleine statistische Fehler aufweisen, keinerlei Abweichungen vom monotonen Verlauf. Gelegentlich wurde ein Buckel bei etwa 3,5 MeV festgestellt. Er fehlt im Koinzidenzspektrum und ist eindeutig der Reaktion $O^{18}(p,\alpha)N^{15}$ zuzuschreiben, deren Q-Wert von 3,969 MeV eine α-Energie von 3,48 MeV ergibt. In der Tat konnte dieser Buckel deutlich nachgewiesen werden an

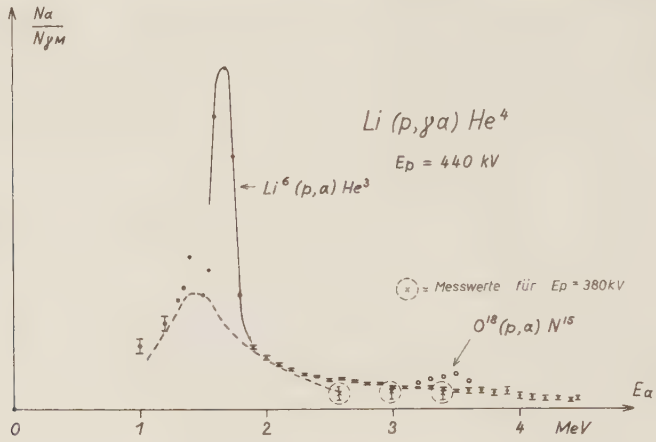


Fig. 8

Li-Targets, die oxydiert wurden. Die an solchen Targets erhaltenen Messpunkte sind in Figur 8 als Kreise eingezeichnet. Mit der vorliegenden Genauigkeit der Punkte des Einzelspektrums lässt sich die Intensität eines damit verträglichen Niveaus des Be^8 berechnen. Die nachweisbare Mindestintensität hängt ausser von der Energie stark von der Breite des hypothetischen Niveaus ab. In Tabelle II sind für die zwei in Frage kommenden Energiebereiche die Mindestintensität solcher Niveaus in Prozenten der gesamten α-Intensität für verschiedene Werte der Breite zusammengestellt:

Tabelle II

E_α' MeV	E_B MeV	Γ MeV	I/I_{Tot} %
2–3	4–6	0,5	0,5
		1,0	1
3–4,5	6–9	0,5	1
		1,0	2

Daraus folgt, dass wenn überhaupt höhere angeregte Zustände des Be als das 2,9-MeV-Niveau mit geradem Spin und gerader Parität vorhanden sind, diese bei den γ-Übergängen praktisch nicht angeregt werden. Dies deckt sich mit dem Resultat von La Vier, Hanna und Gelinas[11]) bei derselben Reaktion. Aber auch bei anderen Reaktionen, die unter Partikelemission zum Be^8 führen, konnte nur das eine breite Niveau bei 2,9 MeV gefunden werden, wie zum Beispiel bei der Untersuchung von Moak und Wissemann der Reaktion $Li^6(He^3,p)Be^8$ [10]) oder derjenigen von Frost und Hanna an der Reaktion $Li^8(\beta)Be^8$ [8]). Insbesondere haben aber auch die neueren α-α-Streumessungen gezeigt, dass bis zu Energien $E_B \approx 6$ MeV nur die vom Grundzustand und dem 1. angeregten Zustand $I = 2^+$ herrührenden Streuphasen auftreten[16]) [17]).

Ein Vergleich der Figuren 7 und 8 zeigt, dass der Abfall der α-Intensität gegen hohe Energien des Einzelspektrums viel langsamer erfolgt als beim Koinzidenzspektrum. In Figur 7 ist der Verlauf des Einzelspektrums punktiert eingezeichnet. Um diese Diskrepanz aufzuklären, wurden einige Punkte des Einzelspektrums mit einer Protonenenergie von 0,38 MeV, das heisst unterhalb der $Li^7(p,\gamma)Be^8$-Resonanz gemessen. Diese Punkte sind in Figur 8 als Kreuze eingezeichnet. Sie zeigen, dass etwa die Hälfte der bei Energien oberhalb 2,5 MeV registrierten α-Teilchen des Einzelspektrums nicht resonant und nicht γ-koinzident sind und daher nicht von niedrigen Anregungszuständen des Be^8 stammen. Da der direkte nicht-resonante Zerfall $Li^7(p,\alpha)\alpha$ einen grossen Wirkungsquerschnitt besitzt, so muss dieser Untergrund von der kleinen Anzahl an der Kammerwand gestreuten α-Teilchen herrühren, die Impulse im CsI verursachen, deren Grösse unter der oberen Kanalgrenze liegen.

Wenn auch die Breite des beobachteten Niveaus bei 2,9 MeV vergleichbar mit der Anregungsenergie ist, sollte es doch möglich sein, die Messungen durch eine geeignet modifizierte Breit-Wigner Ein-Niveau-Beziehung darzustellen. Die Ausbeute Y in Funktion der Anregungsenergie $E_B = 2\,E_\alpha' - E_0$ muss von der Form sein:

$$Y = \text{const} \frac{T_{e'}(E_\gamma)\,\Gamma(E_B)}{(E_B - E_{B'})^2 + \Gamma^2/4}$$

wo $T_{l'}$ die zur Energie E_B des Endkerns führende Übergangswahrscheinlichkeit für γ-Strahlung der Multipolarität l' bedeutet, $E_{B'}$ der Resonanzenergiewert des betrachteten Niveaus und Γ die fast ausschliesslich durch die α-Zerfallswahrscheinlichkeit des Be^8 bestimmte Breite, die wiederum proportional der Barrierenpenetrabilität für α-Teilchen mit dem Drehimpuls l ist. Der γ-Übergang zum Niveau $I = 2^+$ vom Niveau $I = 1^+$ kann durch magnetischen Dipol- oder elektrische Quadrupolstrahlung erfolgen. Die Übergangswahrscheinlichkeit ist proportional $\nu^{2l'+1}$. Unter der

Annahme der kleinsten Multipolarität $l' = 1$, magnetische Dipolstrahlung, ist $T_{l'}(E_\gamma) \approx \nu^3 \approx (E^* - E_B)^3$. Die in Figur 7 ausgezogene Kurve ist den experimentellen Punkten durch Wahl der Parameter Γ und E_B angepasst, wobei sich die Werte

$$E_B = 2{,}8 \text{ MeV}; \quad \Gamma = 1{,}9 \text{ MeV}$$

ergaben. Wie Figur 7 zeigt, wird die Asymmetrie der beobachteten Verteilung sehr gut durch die modifizierte Breit-Wigner-Beziehung wiedergegeben.

Durch die vorliegenden und andere erwähnten Messungen ergibt sich, dass Be^8 zwischen 0 und 9 MeV sicher keine α-instabilen Zustände besitzt. Die Existenz von γ-strahlenden Niveaus scheint bei solch niedrigen Anregungsenergien äusserst unwahrscheinlich. Damit sollte es möglich sein, Be^8 wenigstens bei niedrigen Energien durch ein einfaches α-Modell zu erklären, wie dies WHEELER[13]), HAEFNER[14]) und INGLIS[15]) versucht haben. Für das Kraftgesetz zwischen zwei α-Teilchen muss ein Potential gewählt werden, von der Art des Morsepotentials für zweiatomige Moleküle, modifiziert mit der Coulomb-Abstossung bei grossen Abständen, das heisst attraktive, nukleare Kräfte bei mittleren und stark abstossende Kräfte bei kleinen Abständen. Ein solches Potential ist das von HAEFNER benützte:

$$0 \leqslant r \leqslant r_0\colon\ V = q^2 \frac{\hbar^2}{2\mu r^2} - D \qquad r \geqslant r_0\colon\ V = \frac{Z^2 e^2}{r}$$

wo μ die reduzierte Masse des Systems, q^2, r_0 und D geeignet zu wählende Konstanten, Ze die Ladung jedes der beiden Teilchen bedeutet. Der Radialteil R der Wellenfunktion wird gegeben durch:

$$E = E_B + E_0$$

$$r < r_0\colon \frac{1}{r^2}\frac{d}{dr}\left(r^2 \frac{dR}{dr}\right) + \left(k_0^2 - \frac{q^2 + l(l+1)}{r^2}\right) R = 0 \qquad k_0 = \sqrt{\frac{2\mu(E+D)}{\hbar^2}}$$

$$r > r_0\colon \frac{1}{r^2}\frac{d}{dr}\left(r^2 \frac{dR}{dr}\right) + \left(k^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} - \frac{Z^2 e^2}{r^2}\right) R = 0 \qquad k = \sqrt{\frac{2\mu E}{\hbar^2}}$$

Wählt man für q^2 den Wert 30, so sind die 2 Lösungen für $r < r_0$ mit $l = 0$ und $l = 2$:

$$R_0(r) = \frac{A_0}{\sqrt{k_0 r}} J_{11/2}(k_0 r) \qquad \text{exakt und für}$$

$$l = 2 \qquad R_2(r) = \frac{A_2}{\sqrt{k_0 r}} J_6(k_0 r) \qquad \text{in guter Näherung.}$$

Für $r > r_0$ sind die Lösungen:

$$R_l(r) = \frac{B_l}{kr}\left[\cos\delta_l \cdot F_l(kr) + \sin\delta_l \cdot G_l(kr)\right]$$

wobei F_l und G_l die reguläre und irreguläre Coulombfunktion bedeuten. Wie HAEFNER gezeigt hat, ergibt sich aus der Lage der Zustände $l = 0$ und $l = 2$ bei 0,09, bzw. 2,8 MeV, $r_0 = 4{,}5 \times 10^{-13}$ cm und $D \approx 29{,}2$ MeV. Die Lebensdauer der beiden virtuellen Zustände ergibt sich aus den Randbedingungen unter Verwendung der tabellierten Coulombfunktionen

$$\tau = \frac{k^2}{v\, B_l^{\,2}} \int_0^{r_0'} r^2\, R_l^{\,2}\, dr$$

wo $\quad v = 2\sqrt{E/m_\alpha}$

die Relativgeschwindigkeit der beiden α's bedeutet; r_0' ist eine geeignet zu wählende Grenze des «Kerns». Für die nachfolgende Rechnung wird für r_0' die Austrittstelle der Coulomb-Barriere $r_0' = Z^2 e^2/E$ gewählt (Fig. 9).

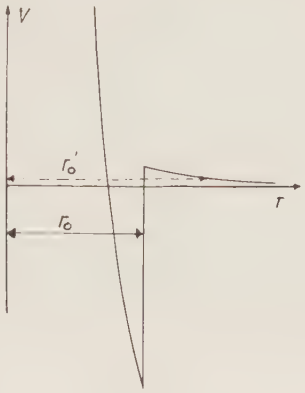


Fig. 9

Damit erhält man für die Lebensdauer der beiden Zustände:

$$\tau_0 = 0{,}92 \times 10^{-16}\ \text{sec}; \qquad \tau_2 = 0{,}34 \times 10^{-21}\ \text{sec}.$$

Würde $r_0' = r_0$ gewählt, so würden diese Werte etwa 2- bzw. 3mal kleiner. Die so berechnete Lebensdauer τ_2 des abgeregten Zustandes ist in sehr guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert $\tau_2 = \Gamma/\hbar = 0{,}35 \times 10^{-21}$ s. Die Lebensdauer des Grundzustandes ist direkt noch nie bestimmt worden. Aus der Tatsache, dass bei der α-α-Streuung die

Resonanzstreuung beim Grundzustand nicht beobachtet wurde, schliessen Heydenburg und Temmer[16]) auf $\tau_0 \geqslant 2 \times 10^{16}$ s. Treacy[18]) konnte keine merkbare Abbremsung im festen Material des Be^8-Kernes vor dem α-Zerfall feststellen und schliesst daraus, dass $\tau < 4 \times 10^{-15}$ s ist. Der oben berechnete Wert liegt mit $0{,}9 \times 10^{-16}$ s etwas ausserhalb der experimentellen Grenzwerte $2 \times 10^{-16} \leqslant \tau_0 \leqslant 40 \times 10^{-16}$ s.

Herrn Dr. A. Rytz sind die Autoren für die Mithilfe und Überwachung der van de Graaff-Anlage zu Dank verpflichtet. Die Schweizerische Kommission zur Förderung der Forschung auf dem Gebiet der Atomenergie (S.K.A.) hat die vorliegende Untersuchung finanziell in grosszügiger Weise unterstützt.

Literatur

[1]) Ajzenberg, Lauritsen, Rev. Mod. Phys. *27*, 77 (1955).
[2]) Malm, Inglis, Phys. Rev. *92*, 1326 (1953).
[3]) Titterton, Phys. Rev. *94*, 206 (1954).
[4]) Walker, McDaniel, Phys. Rev. *45*, 63 (1934).
[5]) Burcham, Freeman, Phil. Mag. *41*, 921 (1950)
[6]) Erdös, Scherrer, Stoll, Helv. Phys. Acta, XXVI, 207 (1953).
[7]) Inall, Boyle, Phil. Mag. *44*, 1081 (1953); *45*, 768 (1954).
[8]) Frost, Hanna, Phys. Rev. *99*, 8 (1955).
[9]) Glättli, Loepfe, Stoll, Helv. Phys. Acta XXVIII, 367 (1955).
[10]) Moak, Wisseman, Phys. Rev. *101*, 1326 (1955)
[11]) Lavier, Hanna, Gelinas, Phys. Rev. *103*, 143 (1956).
[12]) Briggs, Proc. Royal Soc. A *114*, 341 (1927).
[13]) Wheeler, Phys. Rev. *59*, 27 (1941).
[14]) Haefner, Rev. Mod. Phys. *23*, 228 (1951).
[15]) Inglis, Rev. Mod. Phys. *25*, 330 (1953).
[16]) Heydenburg, Temmer, Phys. Rev. *104*, 123 (1956).
[17]) Russell, Phillips, Reich, Phys. Rev. *104*, 135 (1956).
[18]) Treacy, Proc. Phys. Soc. A *68*, 204 (1955).

Absorptionsspektrum des NO-Moleküls Feinstruktur-Analyse der δ- und β-Banden und homogene Störung $C\,^2\Pi$–$B\,^2\Pi$

von **A. Lagerqvist** (Stockholm) und **E. Miescher** (Basel)

(4. II. 1958)

Abstract. The absorption spectrum of nitric oxide (NO) is studied on plates obtained with the Ottawa 3-meter and the Chicago 6-meter vacuum spectrographs. Rotational analyses are given for 5 bands [(0,0), (1,0), (2,0), (3,0) and (4,0)] of the δ-system ($C^2\Pi$–$X^2\Pi$) and for 15 bands [(5,0)–(19,0)] of the β-system ($B^2\Pi$–$X^2\Pi$) in the wavelength region 1980–1590 Å. The $B\,^2\Pi$ and $C^2\Pi$ excited states show a strong and extended mutual perturbation of the homogeneous type as a consequence of the crossing of the two corresponding potential energy curves. The perturbation parameter H is calculated and has a pronounced maximum if plotted against the excitation energy (s. Fig. 16). In order to explain quantitatively the observed vibrational and rotational perturbations a "deperturbation" in first and second approximation is carried out on the basis of perturbation theory and the H-curve. This unusually fine example of a perturbation in bandspectra is compared with hitherto known cases for the AgH and PbH molecules. The observed anomalous vibrational and rotational isotope shifts in the perturbed bands are thoroughly discussed.

I. Einleitung

§ 1. Im Absorptionsspektrum von Stickoxyd (NO), das LEIFSON[1]) (1926) erstmals photographiert hat, sind die aus der Anregung mit aktivem Stickstoff bekanntgewordenen β- und δ-Banden von SPONER und HOPFIELD[2]) (1926) bzw. von KNAUSS[3]) (1928) identifiziert worden. TANAKA[4]) hat 1949 mit grösserer Dispersion die β-Banden Progression bis zu $v' = 12$ und die δ-Banden bis $v' = 2$ in Absorption beobachtet. SUTCLIFFE und WALSH[5]) haben weitere Banden $v' = 13$, 14, 15 und 16 im β-System, $v' = 4$ im δ-System zugeordnet. Diese Deutungen stützten sich jedoch mehr oder weniger auf Plausibilitätsgründe, da die fraglichen Ban-

*

den nicht in Linien aufgelöst waren und deshalb eine sichere Zuordnung auf Grund der Feinstruktur nicht möglich war. In den beiden Progressionen zeigten sich starke Störungen in der Lage und in den Intensitäten, einzelne Glieder fehlten oder wurden als diffus erscheinend beschrieben. MARMO[6]) hat das Absorptionsspektrum von NO photoelektrisch untersucht, allerdings mit sehr geringer spektraler Auflösung, so dass er in der Deutung der Banden keinen Fortschritt erzielen konnte.

Die Feinstruktur der im langwelligen Emissionsspektrum von NO erscheinenden β-Banden ist von JENKINS, BARTON und MULLIKEN[7]) 1927 in einer klassischen Arbeit geklärt worden. Die β-Banden bilden einen $^2\Pi - {}^2\Pi$-Übergang. Der angeregte Zustand wird mit $B^2\Pi$ bezeichnet, der untere ist der $X^2\Pi$-Grundzustand des NO-Moleküls. Die Rotationsanalysen von JENKINS, BARTON und MULLIKEN umfassen die Vibrationsniveaus $v = 0, 1, 2$ und 3 des $B^2\Pi$-Terms. Die Feinstruktur der δ-Banden ist von SCHMID[8]) 1930 untersucht worden, allerdings nur an einer einzigen Bande (0,3 bei 2140 A) im Emissionsspektrum, die weder voll aufgelöst noch frei von Überlagerungen durch andere Banden war. SCHMID schloss auf einen $^2\Sigma - {}^2\Pi$-Übergang und seitdem wird der obere Zustand des δ-Systems als $C^2\Sigma$-Term in allen Tabellen aufgeführt.

Die Banden des δ-Systems sind die intensivsten im Absorptionsspektrum von NO oberhalb 1500 A (vgl. MARMO[6]); sie kommen deshalb als erste für den Nachweis von NO im U.V.-Spektrum in Betracht. Die Absorptionsstärke der β-Banden ist im allgemeinen weit geringer.

Die dieser Arbeit zugrunde liegenden Aufnahmen wurden 1954 während eines Gastaufenthaltes des einen von uns (E. M.) am National Research Council of Canada in Ottawa auf Anregung von Dr. G. HERZBERG gewonnen*). In der Zwischenzeit hat Miss M. UEDA[10]) eine Untersuchung der NO-Absorption an einem 3 m Vakuumgitter und 2,2 A/mm reziproker Dispersion publiziert. Ihre Ergebnisse können jedoch mangels Feinstrukturanalysen und hinreichender Gasreinheit nicht zur Klärung des Spektrums dienen.

II. Experimentelles

§ 2. Der benützte Vakuumspektrograph enthält ein Bausch- und Lomb-Gitter mit 30000 Linien pro inch und 3 m Radius. Die Aufnahmen wurden unter Verwendung der von BRIX und HERZBERG[11]) beschriebenen Vorzerlegungseinrichtung in der 4. Ordnung mit der reziproken Dispersion von 0,65 A/mm gemacht. Als Lichtquelle diente eine Lyman-Entladung, photographiert wurde auf Ilford-Q2-Platten. Die Linien eines

*) Vorläufige Mitteilung siehe [9]).

in der 2. Ordnung aufgenommenen Eisenbogenspektrums bildeten die Referenzlinien. Deren Wellenlängen wurden den M.I.T.-Tabellen entnommen, nach EDLÈNS Tabellen auf Vakuum reduziert und durch 2 dividiert.

Das NO-Gas befand sich in einem allseitig mit flüssigem Stickstoff oder Sauerstoff kühlbaren Rohr von 26,5 cm Länge, wie es von HERZBERG und HUGO[12]) beschrieben worden ist. Die tiefe Temperatur des Gases bewirkt eine Verkürzung der Banden und damit eine Verminderung der Überlagerungen im Spektrum; gleichzeitig wird damit völlige spektrale Reinheit des Gases erreicht. Bei Kühlung mit flüssigem Sauerstoff konnte der Druck des NO-Gases bis 4 mm Hg gesteigert werden. Für die intensiven Banden waren kleinere Drucke (0,8 und 0,1 mm Hg) günstiger. Eine bei Raumtemperatur allerdings mit weitem Spalt gemachte Aufnahme erwies sich in Einzelfällen zur Messung von Rotationslinien bei hohem J als nützlich.

Der so aufgenommene Spektralbereich umfasst die Wellenlängen 2100 bis 1350 A, wobei im langwelligen Teil dieses Bereiches bis etwa 1580 A hinunter die Breite des Spektrographenspaltes 0,01 mm war. Im kurzwelligen Teil musste der Spalt auf das doppelte bis fünffache vergrössert werden, um eine ausreichende photographische Schwärzung zu erzielen, was zusammen mit der rasch abnehmenden Frequenzdispersion einen ins Gewicht fallenden Verlust an Auflösung bewirkte.

Um die Analysen einzelner Banden im Gebiet höherer J-Werte fortsetzen zu können, stellte uns auf unsere Bitte hin Herr Dr. P. G. WILKINSON (University of Chicago) eine in dritter Ordnung des 6-m-Vakuumgitters in Chicago gewonnene NO-Absorptionsaufnahme in überaus freundlicher Weise zur Verfügung. Das NO-Gas hatte bei dieser Aufnahme Raumtemperatur. Die in Tabelle 2 gegebenen Linien mit hohen J-Werten sind auf dieser Platte gemessen worden.

III. Resultate

§ 3. Die in dieser Arbeit mitgeteilten Resultate beschränken sich auf den Bereich oberhalb 1595 A, in dem alle eindeutig als zum β- bzw. δ-System gehörenden Banden liegen. Es fallen in ihn auch γ- ($A^2\Sigma^+ - X^2\Pi$) und ε-($D^2\Sigma^+ - X^2\Pi$)Banden, über die gesondert berichtet worden ist (BARROW und MIESCHER[13]), ferner Banden des β'-($B'^2\Delta - X^2\Pi$)- und des ($E^2\Sigma^+ - X^2\Pi$)-Systems, über deren obere Zustände man aus Feinstrukturanalysen im Emissionsspektrum (MIESCHER[14], FEAST[15]) Bescheid weiss. Unterhalb 1595 A häufen sich die Banden mehr und mehr, ohne dass eine Konvergenz oder eine Anordnung in Rydbergserien erkennbar würde. Ausser den restlichen β'-Banden sind nur einige wenige bisher untersucht worden[13]).

Figur 1 gibt eine Übersicht über das NO-Spektrum und Tabelle 1 eine Liste der vermessenen Banden, die alle vom niedrigsten Schwingungsniveau $v'' = 0$ des $X^2\Pi$-Zustandes ausgehen und die charakteristische Dublettaufspaltung (125 cm $^{-1}$) des NO-Grundzustandes zeigen. Die Reihe der rotabschattierten β-Banden ist bis $\beta(12,0)$ leicht zu verfolgen, allerdings ist $\beta(7,0)$ von $\delta(0,0)$ und $\beta(8,0)$ von $\varepsilon(0,0)$ verdeckt; $\beta(9,0)$ ist auf-

Tabelle 1

Hauptkanten

λ_A		$\beta(v,o)$	$\delta(v,o)$	
1982	R	(5,0)		
1945	R	(6,0		
1909	V		(0,0)	von $\beta(7,0)$ überlagert
1877	R	(8,0)		von $\varepsilon(0,0)$ überlagert
1845	R	(9,0)		
1828	V		(1,0)	
1815	R	(10,0)		
1787	R	(11,0)		
1762	R	(12,0)		
1752			(2,0)	kantenlos
		(13,0)		keine Kante beobachtet, von $\varepsilon(2,0)$ überlagert
1708	R	(14,0)		
1689	R		(3,0)	
1676	R	(15,0)		
1658	R	(16,0)		
1637	R	(17,0)		von $\beta'(1,0)$ überlagert
1620	RV		(4,0)	
1616	R	(18,0)		
1598	R	(19,0)		

R = rot absch. V = violett absch.

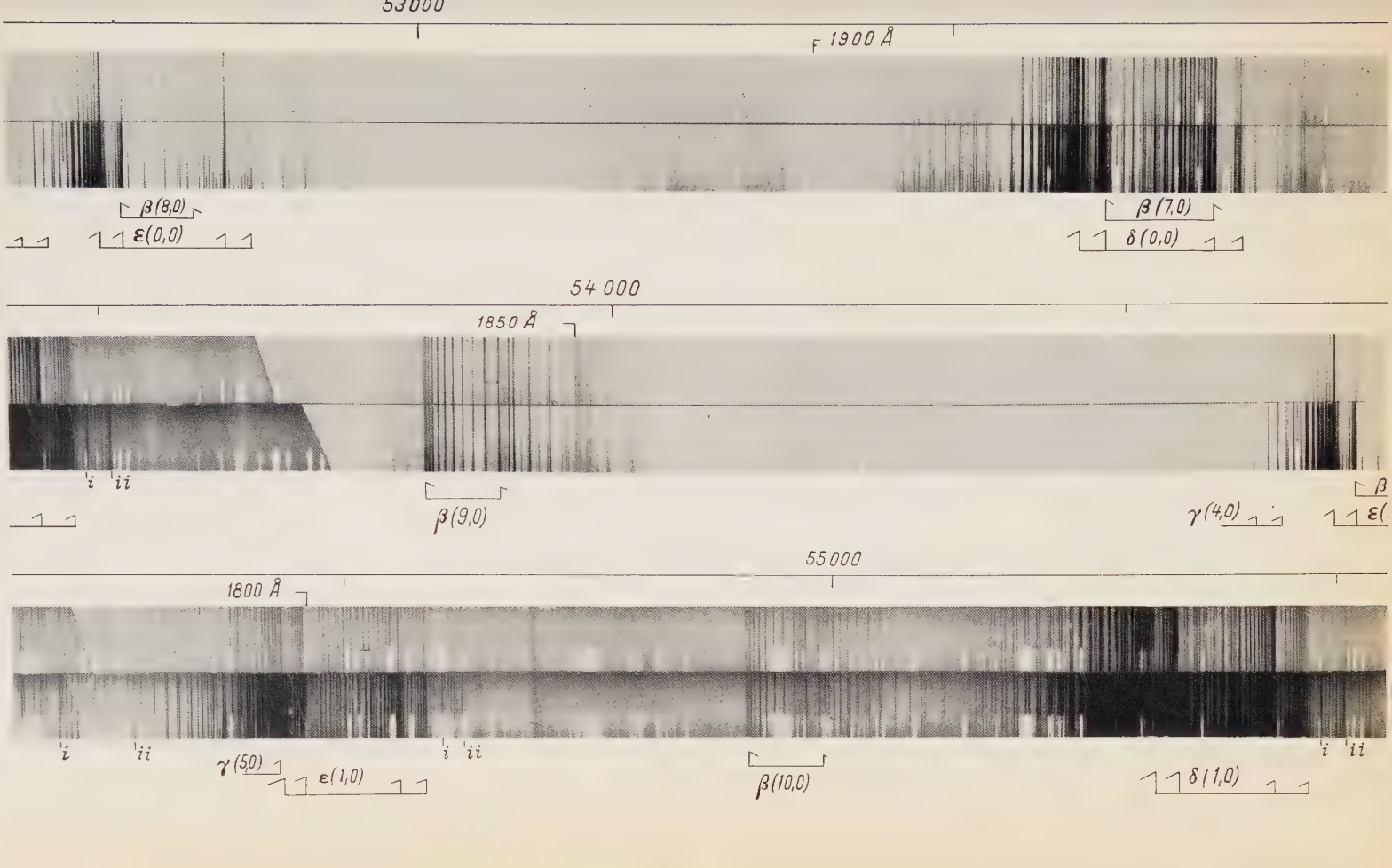
Fig. 1 (S. 225–228)

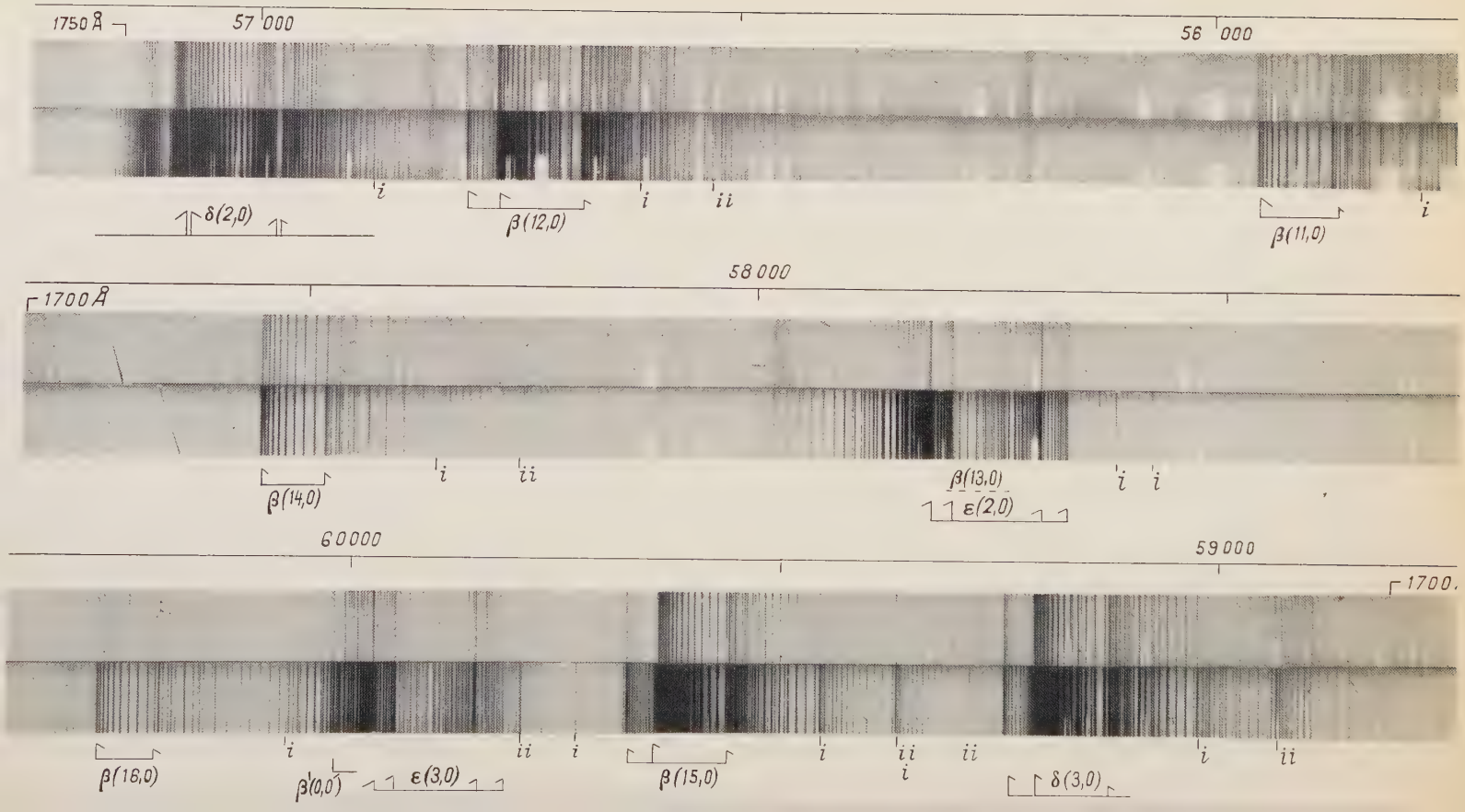
Absorptionsspektrum von NO.

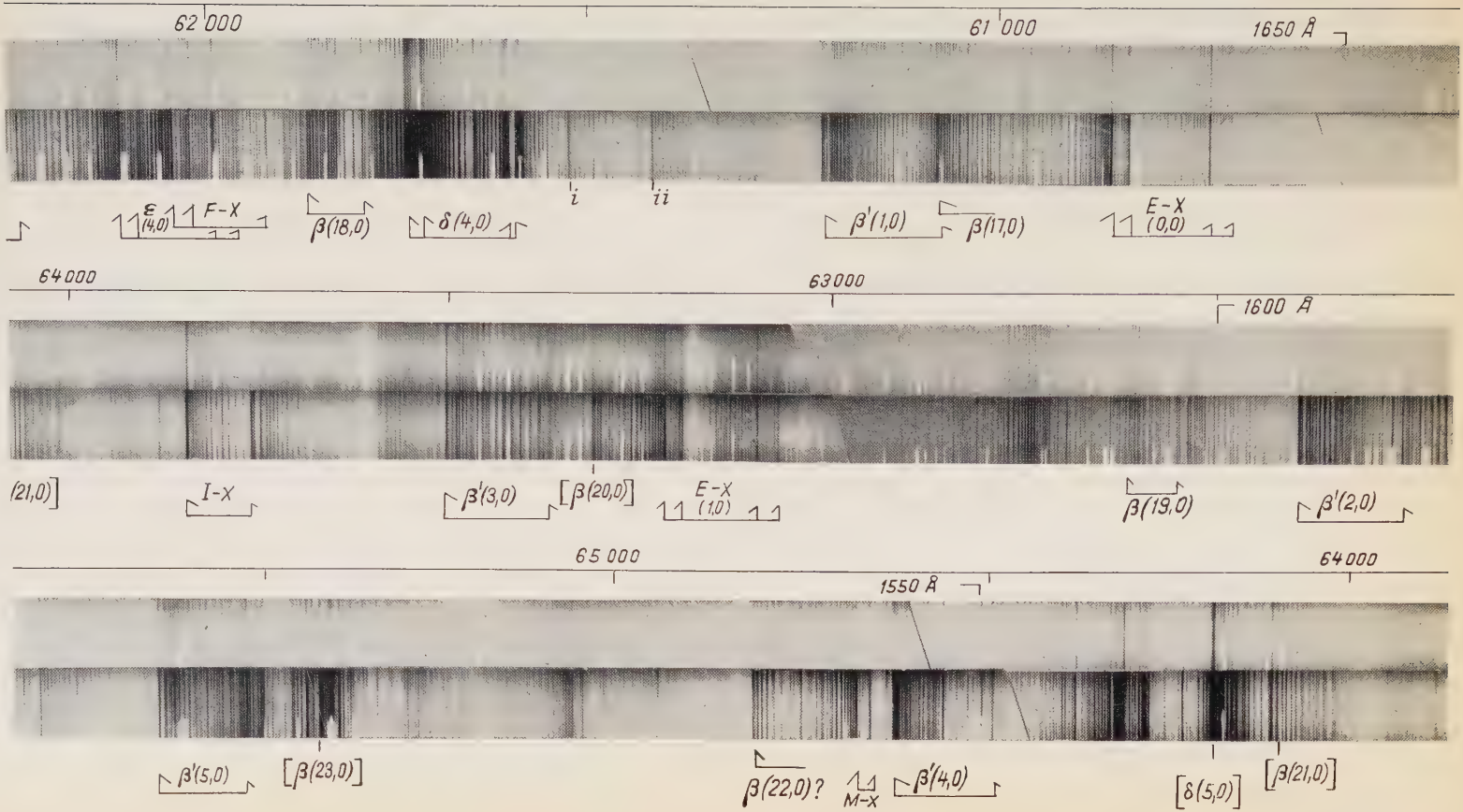
3-m-Gitter, 4. Ordn. (Ottawa), Lymanlampe, Fe-Linien in 2. Ordn.
NO-Gas: Schichtdicke 26,5 cm, Temperatur −180 °C.
Druck: 1920–1840 Å 0,1 und 2 mm Hg.
1840–1585 Å 0,8 und 4 mm Hg.
1585–1385 Å 0,15 und 1,5 mm Hg.

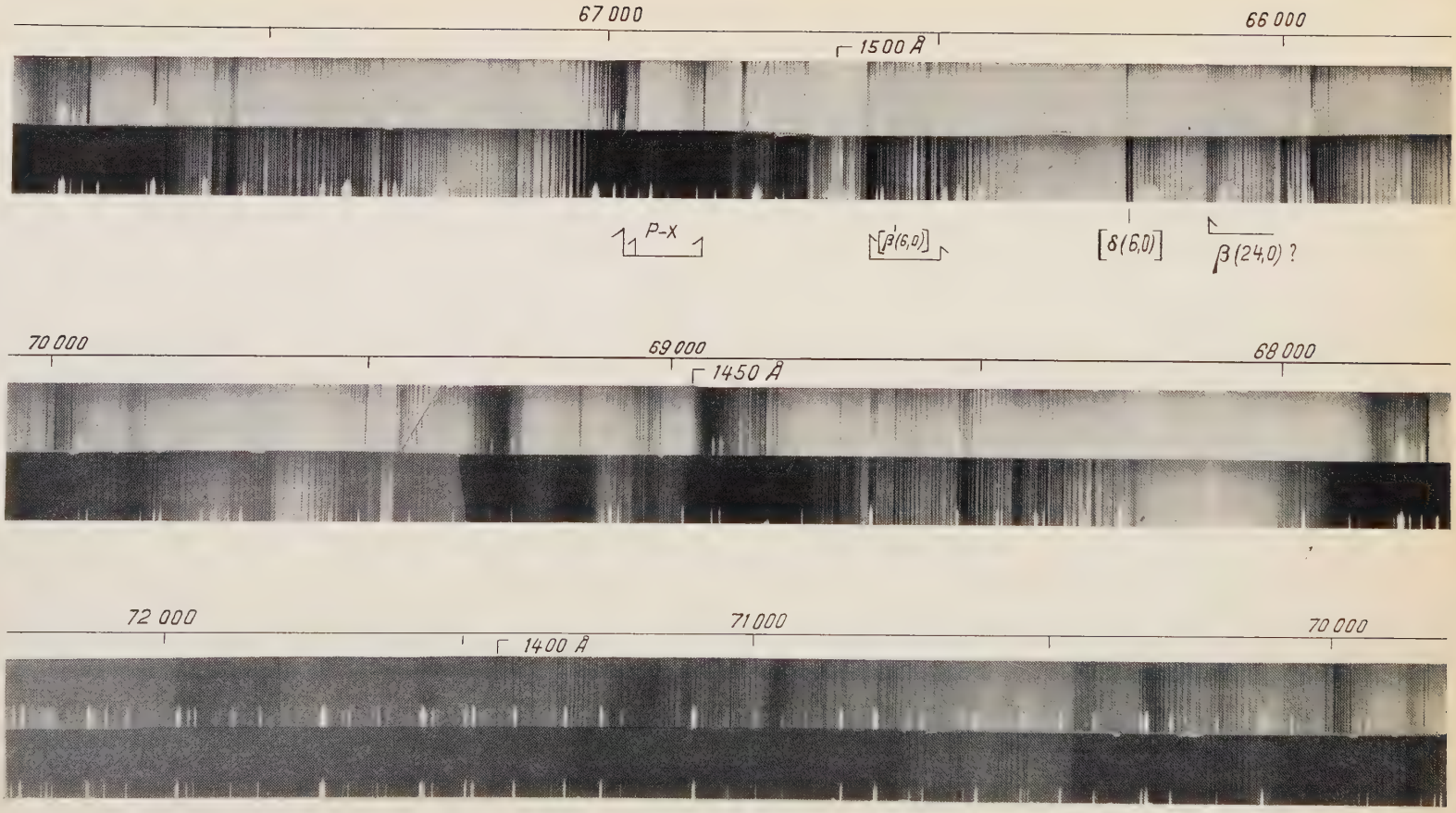
Die im kurzwelligen Teil in [ ] gesetzte Bezeichnung ist spekulativ, da für diese Banden Rotationsanalysen nicht vorliegen.

i N^1O^5 *ii* NO^{18}


53000
1900 Å
β(8,0)
ε(0,0)
β(7,0)
δ(0,0)
54 000
1850 Å
i
ii
β(9,0)
γ(4,0)
β
ε(
55000
1800 Å
i
ii
γ(5,0)
ε(1,0)
i
ii
β(10,0)
i
ii
δ(1,0)


1750 Å
57 000
56 000
i
δ(2,0)
i
ii
β(12,0)
β(11,0)
i
58 000
1700 Å
i
ii
β(14,0)
β(13,0)
ε(2,0)
i
i
60000
59 000
1700
i
ii
i
β(16,0)
β'(0,0)
ε(3,0)
i
ii
β(15,0)
i
i
ii
δ(3,0)
i
ii


62 000
61 000
1650 Å
ε (4,0)
F-X
β(18,0)
δ(4,0)
i
ii
β'(1,0)
β(17,0)
E-X (0,0)
64000
63000
1600 Å
(21,0)]
I-X
β'(3,0)
[β(20,0)]
E-X (1,0)
β(19,0)
β'(2,0)
65 000
64000
1550 Å
β'(5,0)
[β(23,0)]
β(22,0)?
M-X
β'(4,0)
[δ(5,0)]
[β(21,0)]


67 000
66 000
1500 Å
P-X
[β'(6,0)]
[δ(6,0)]
β(24,0) ?
70 000
69 000
68 000
1450 Å
72 000
71 000
70 000
1400 Å

fallend intensiv, dasselbe gilt noch stärker für $\beta(11,0)$ und $\beta(12,0)$, wobei die letztere Bande auch in der Lage stark verschoben ist. $\beta(13,0)$ fehlt auf den Tieftemperatur-Aufnahmen gänzlich, $\beta(14,0)$ und $\beta(16,0)$ zeigen eindeutig die Struktur der β-Banden, zwischen ihnen erkennt man zwei sehr intensive Banden von fast gleicher, β-ähnlicher Struktur, und es ist zunächst unmöglich zu entscheiden, welche davon $\beta(15,0)$ ist. $\beta(17,0)$ ist überlagert von $\beta'(1,0)$ und $E^2\Sigma - X^2\Pi\,(0,0)$. $\beta(18,0)$ und $\beta(19,0)$ schliesslich liegen in einem Gebiet, in dem sich die Banden schon zu häufen beginnen.

Die Reihe der δ-Banden beginnt mit den violett abschattierten $\delta(0,0)$- und $\delta(1,0)$-Gliedern, ihre Fortsetzung zeigt in $\delta(2,0)$ und $\delta(4,0)$ eine offensichtlich gestörte und in $\delta(3,0)$, der zwischen $\beta(14,0)$ und $\beta(16,0)$ gelegenen überzähligen Bande, fast β-ähnliche Struktur.

In Figur 1 erkennt man deutlich einige Banden der isotopen Moleküle $N^{15}O$ und NO^{18}. Die Intensität der Isotopenbanden ist unerwartet gross, vermutlich infolge einer merklichen Anreicherung der schweren Isotope im Destillationsprozess beim Füllen des Absorptionsrohres.

Rotationsanalysen.

§ 4. Tabelle 2 enthält die Wellenzahlen der vermessenen Rotationslinien. Die Einordnung in die Bandenzweige und die Numerierung waren dadurch erleichtert, dass die Termdifferenzen ΔF_1 (von $X\,^2\Pi_{1/2}$) und ΔF_2 (von $X\,^2\Pi_{1^1/_2}$) des Grundzustandes bekannt sind[16]) oder aus genauen Konstanten[17]) exakt berechnet werden können.

β-Banden. Die Mehrzahl der Banden des β-Systems zeigt ein fast ungestörtes Aussehen. Es sind stark die 4 Zweige R_{11}, P_{11}, R_{22} und P_{22}, in den Q-Zweigen werden nur die ersten Linien beobachtet, wie es für einen $^2\Pi(a) - {}^2\Pi(a)$-Übergang charakteristisch ist. Schwache Satellitenzweige ($\Delta\Sigma \neq 0$) sind an einzelnen Banden messbar. Die stark gestörten Banden wie $\beta(12,0)$ und die als $\beta(15,0)$ bezeichnete Bande dagegen zeigen Satellitenzweige von nahezu der Intensität der Hauptzweige, $\beta(15,0)$ sogar eine grosse Λ-Aufspaltung.

δ-Banden. Die $\delta(0,0)$-Bande zeigt mit Ausnahme des Gebietes der niedrigsten J-Werte und die $\delta(1,0)$-Bande ausser für hohe J-Werte die Struktur eines normalen $^2\Pi(b) - {}^2\Pi(a)$-Überganges mit 8 starken Zweigen, von denen vor allem R_{21}-Linien als kurzwellige Bandenausläufer unüberlagert gut erkennbar sind. Die Linien der δ-Banden weisen eine mit J rasch wachsende, grosse Λ-Aufspaltung auf. In $\delta(2,0)$ sind auch Q-Zweige beobachtet, alle Zweige nehmen einen gestörten Verlauf, was insbesondere an den R_{21}-Linien auffällt, die mit wachsendem J zunächst zusammen, dann aber auseinanderstreben und deshalb in Aufnahmen kleiner Dispersion eine diffuse Bande vortäuschen können (Tanaka[4]). Die

Tabelle 2 — β (5,0)

J−½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}
0	50455,8		452,6			
1	55,8	447,5	50,7	373,1		
2	54,7	42,3	47,5	72,1	359,0	367,8
3	52,1	35,8	42,9	69,8	52,4	64,6
4	48,3	27,8		66,3	44,6	60,1
5	43,2	18,7		61,5	35,4	54,3
6	36,9	08,2		55,4	25,0	47,2
7	29,3	396,4		47,8	13,2	
8	20,3	83,4		39,2	00,1	
9	10,2	69,0		29,3	285,9	
10	398,7	53,3		18,1	70,3	
11	85,9	36,5		05,3	53,4	
12	72,1	18,4				
13	56,5	298,8				
14	40,3	78,1				

Tabelle 2 — β (6,0)

J−½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}	R_{21}
0	51409,5		406,4				
1	09,5	401,4	04,5	328,5		323,2	
2	08,2	396,1		27,6	314,7	20,1	447,5
3	05,7	89,4		25,1	08,0	15,4	45,5
4	01,7	81,5		23,3	00,0	09,6	42,2
5	396,6	72,3		16,3	290,7	02,5	37,8
6	90,1	61,7		10,1	80,1		31,8
7	82,3	49,8		02,5	68,2	284,2	25,1
8	73,2	36,6		293,5	55,0		16,9
9	62,8	22,1		83,2	40,5		
10	51,1	06,3		71,7			
11	38,1	289,2					
12	23,8	70,8					

Tabelle 2 — β (7,0)

J−½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}	R_{21}	P_{21}	Q_{21}
0	52349,0		346,0				373,3		
1	49,0	341,0	44,1	256,1		248,5	76,1		368,3
2	48,0	35,7	40,7	59,1	239,8	47,6	79,2	359,9	67,8
3	45,5	29,2	36,4	61,7	35,5	47,0	82,1	56,0	67,3
4	41,7	21,2	30,4	61,2	31,6	46,2	82,1	52,4	66,9
5	36,4	12,1	23,3	56,9	27,2	42,4	78,4	48,7	63,7
6	29,8	01,6	14,8	50,8	19,8	34,8	72,7	42,0	
7	21,9	289,6		43,3	08,8	25,2	65,9	31,6	
8	12,7	76,3		34,1	195,9	13,9		19,5	
9	02,0	61,7		23,4	81,3				
10	290,2	45,6		11,9	65,4				
11	76,9	28,5		198,8	48,1				
12	62,4	09,8		84,4	29,4				
13	46,2	189,8							
14	28,7	68,5							
15		46,3							
16		21,9							

Tabelle 2 — β (8,0)

J−½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}
0	53276,5		273,5			
1	75,6	268,3	71,5			
2	74,7	63,0	68,3	197,5		
3	72,4	56,3	63,0	94,9		185,2
4	68,3	48,2	57,4	91,0	169,7	79,6
5	62,8	38,8	50,0	85,5	60,7	72,4
6	56,1	28,0		79,0	49,9	
7	47,8	16,0		70,9	37,6	
8	38,5	02,5		61,7	24,1	
9	27,7	187,7		51,1	09,1	
10	15,4	71,6		38,7	092,9	
11	01,9	54,1		25,4	75,3	
12	187,0	35,3		10,4	56,3	
13	70,9	15,0		094,2		
14	53,3	093,5				
15	34,4	70,5				
16		46,4				

Tabelle 2 — $\beta(9,0)$

$J-\frac{1}{2}$	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}	R_{21}
0	54186,3		183,4				
1	86,3	178,5	81,3	110,1		104,9	
2	84,9	73,1	78,3	08,8	096,8	01,6	
3	82,1	66,2	73,1	06,1	89,4	96,8	223,1
4	78,3	58,1	67,1	02,3	81,2	90,7	17,9
5	72,7	48,6	59,7	096,8	71,7	83,4	11,9
6	66,0	37,9	51,4	89,9	61,0	74,3	04,5
7	57,7	25,8	40,6	81,8	48,4		195,8
8	47,9	12,3	29,0	72,4	34,8		85,7
9	37,0	097,5		61,8	20,0		74,5
10	24,7	81,2		49,1	03,6		
11	11,0	63,5		35,4			
12	096,0	44,5		20,5			
13	79,7	24,2					
14		02,5					

Tabelle 2 — $\beta(11,0)$

$J-\frac{1}{2}$	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}	R_{21}
0	55963,1		960,3				
1	63,1	955,2	58,2	889,4		884,3	56009,2
2	61,7	49,8	54,6	88,1	875,8	80,9	08,2
3	58,9	43,1	49,8	85,5	69,0	75,8	05,8
4	54,6	35,0	43,8	81,3	60,7	70,0	02,1
5	49,3	25,5	36,3	75,8	51,1	62,4	55997,2
6	42,2	14,6	27,5	69,0	39,9	53,5	91,0
7	34,0	02,4	17,2	60,7	27,8	43,2	83,5
8	24,3	888,9	05,6	51,1	14,0	31,5	74,7
9	13,3	73,9		39,9	798,8		64,5
10	00,9	57,5		27,8	82,3		
11	887,1	39,9		14,0	64,5		
12	72,2	20,7		798,8	45,3		
13	55,5	00,2		82,1	24,7		
14	37,6	778,4					
15	18,4	55,1					
16	797,5	30,6					
17	73,7	04,9					
18		677,1					

Tabelle 2 — $\beta(13,0)$

$J-\frac{1}{2}$	R_{11} cc	R_{11} dd	P_{11} cc	P_{11} dd	R_{22} cc	R_{22} dd	P_{22} cc	P_{22} dd
11			57626,4					
12			08,2					
13			589,0					
14	57630,4		68,2					
15	13,4		46,4					
16	595,2		23,6					
17	76,0		499,7		503,9	502,7		
18	556,9	556,1	475,2	474,7	484,2	483,0	399,8	398,7
19	36,6	35,7	49,3	48,9	64,0	62,2	73,9	72,6
20	16,1	14,9	23,1	22,5	43,3	41,4	47,1	45,7
21	495,6	493,9	396,4	395,4	22,5	20,3	20,2	18,3
22	75,2	73,1	69,1	67,7	03,1	399,8	292,6	290,7
23	55,6	52,9	41,9	40,4	383,9	80,1	65,6	63,2
24	37,0	33,5	14,9	12,8	66,6	61,9	38,8	35,6
25	20,3	15,7	288,6	285,9	51,4		12,9	09,5
26	05,3	399,8	63,2	60,0				
27	392,5	85,9	39,9	35,6				
28			18,3	12,9				

Tabelle 2 — $\beta(14,0)$

$J-\frac{1}{2}$	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}	R_{21}
0	58542,1		539,0				
1	42,1	534,0	36,9	470,8		465,5	
2	40,9	28,8	34,3	69,7	457,0	62,3	589,8
3	38,2	22,1	29,1	67,3	50,3	57,7	87,8
4	34,3	14,1	22,5	63,6	42,4	52,0	84,5
5	29,1	04,9	15,7	58,4	33,0	44,5	79,6
6	22,5	494,2	07,6	52,0	22,3	35,9	73,9
7	14,6	82,2	497,3	44,2	10,4	26,0	66,7
8	05,2	69,1	86,1	34,9	397,1	14,9	58,5
9	494,6	54,4		24,4	82,3		48,9
10	82,6	38,3		12,4	66,2		
11	69,2	20,9		399,1	48,8		
12	54,3	02,2		84,3	30,0		
13	38,3	382,3		68,0	09,8		
14	20,9	60,8		50,5	288,1		
15	02,2	38,0		31,3	65,0		
16	382,3	13,9		10,8	40,6		
17		288,1		288,8	14,5		
18		61,1		65,0	187,3		
19		32,5		40,6	58,5		
20		02,9					
21		171,7					

Tabelle 2 — β (10,0)

J−½	R_{11} cc	R_{11} dd	P_{11} cc	P_{11} dd	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}	R_{21} cd	R_{21} dc	P_{21} cd	P_{21} dc
0	55093,5				090,5							
1	93,5		55085,4		88,6	018,6		013,4				
2	92,1		80,1		85,4	17,2	005,1	10,0				
3	89,5		73,3		81,0	14,6	54998,0	05,1				
4	85,4		65,3		74,3	10,3	89,7	54999,2				
5	80,1		55,9		67,0	05,1	80,3	91,7				
6	73,3		45,3		58,2	54998,6	69,4	82,9				
7	65,3		33,3		48,2	90,6	57,1	72,8				
8	55,9		19,7			81,2	43,5	61,1				
9	45,3		05,1			70,5	28,4					
10	33,3		54989,0			58,5	12,4					
11	19,7		71,7				894,8					
12	05,1		53,4									
13												
14	54975,3											
15	59,1											
16	43,1		868,5									
17	28,4		45,4									
18	916,6	916,1	22,7									
19	08,5	06,0	01,2									
20	05,5	00,8	782,7	782,3					54973,5	968,8		
21	06,0	00,3	68,0	65,6					78,0	71,5		
22	12,7	05,5	58,2	53,6					88,0	80,3	54833,1	828,3
23	23,0	14,4	52,3	46,3					55001,7	92,5	31,2	24,3
24	35,2	25,8	52,3	45,0					17,2	07,3	34,3	26,3
25	49,1	38,6	55,8	47,5					34,2	23,2	41,3	32,1
26	63,8	52,6	61,4	52,3					52,5	40,6	50,2	40,4
27	79,4	67,3	68,6	58,3					71,4	58,6	60,8	49,7
28	95,7	82,7	76,7	65,7						77,3	72,4	60,2
29	55011,9	98,1	85,5	73,6							84,6	71,7
30	28,9	014,6	95,1	82,3								83,5
31			805,3									

Tabelle 2 — β (12,0)

J−½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{21}	P_{21}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}	R_{12}	P_{12}
0	56743,1		739,4							
1	44,2	734,5	38,0			656,6		649,7		
2	44,2	29,8	35,8			57,6	641,1	47,9	624,2	
3	43,5	24,2	32,7		756,3	57,6	36,0	45,5	23,3	
4	41,8	17,6	28,5	777,9	50,8	57,1	30,0	42,2	20,9	596,7
5	38,9	10,1	23,7	76,7	44,2	55,4	23,3	38,2	17,5	88,6
6	35,1	01,7		74,7	38,0	52,6	15,7	33,0	13,1	79,5
7	30,2	692,2		71,6	29,8	48,9	07,3	26,9	07,3	69,3
8	24,2	81,6		67,3	21,2	43,8	597,7	19,6	00,3	58,1
9	16,5	70,0		61,6	11,4	37,3	86,8	10,9	591,9	45,3
10	07,8	57,1		54,9	00,2	29,5	75,0	01,2	82,4	31,5
11	697,5	43,0		46,3	688,1	20,1	61,6	589,7	71,0	16,2
12	85,8	27,5			74,6	09,2	46,9	77,1	58,1	499,5
13	72,8	10,7			59,5	596,7	30,7	62,9	43,9	81,6
14	58,0	592,2				82,4	12,9		28,1	62,0
15	42,2	72,3				66,7	493,6		10,1	41,0
16	24,2	51,0				49,2	72,7		490,9	18,1
17	04,7	28,1				29,8	50,1		70,2	393,8
18	583,6	03,6				08,8	25,8		47,8	
19	60,9	477,6				486,3	399,8			
20	36,6	50,1				62,0	72,1			
21	10,7	20,7				36,0	42,6			
22	483,2	389,7				08,1	11,5			
23	54,2	57,2				378,8	278,5			
24	23,5	23,0				47,8	44,0			
25	391,4	287,3				15,1	07,8			
26	57,2	49,8								
27	22,1	10,9								

Tabelle 2 β (15,0)

J-½	R_{11} cc	R_{11} dd	P_{11} cc	P_{11} dd	Q_{11}	R_{21} cd	R_{21} dc	P_{21} cd	P_{21} dc	Q_{21} cd	Q_{21} dc
0	59648,0				644,7	59685,7					
1	49,4		59639,4		42,9	87,0				59680,7	
2	50,0		34,8		40,8	88,1		59672,3		79,0	
3	49,4		29,3		39,6	88,1		67,0		76,2	
4	48,0		23,0		34,8	88,1		61,2		73,2	
5	46,4		16,2		29,9	87,0		54,9		69,4	
6	44,0		08,2			685,7	685,1			65,1	
7	41,4		599,9			83,7	83,1			660,6	660,1
8	37,8		90,8			81,6	80,7				
9	634,2	633,8	81,2			79,0	77,7				
10	29,9	29,0	71,0			76,2	74,7				
11	25,0	23,8	560,8	560,1		73,2	71,2	605,4	604,1		
12	20,0	18,6	49,5	48,5		70,2	67,9	596,0	594,7		
13	14,8	12,9	38,2	37,0		67,0	64,5	86,3	84,4		
14	09,2	07,0	26,0	25,1		63,9	61,2	76,6	74,5		
15	03,7	01,0	14,4	12,5							
16			02,0	00,0							
17			490,1	487,3							

	R_{22} cc	R_{22} dd	P_{22} cc	P_{22} dd	Q_{22} cc	Q_{22} dd	R_{12}	P_{12}	Q_{12}
1	59567,9				59560,8				
2	67,9		59552,2		58,8		529,4	514,4	620,6
3	67,9		46,9		56,0		29,0	08,5	17,5
4	67,2		40,6		52,2		27,4	02,2	13,5
5	65,7		33,6		48,3		25,1	494,6	08,5
6	63,6		26,0		43,2		22,3	86,1	
7	560,8	560,2	17,5		37,0		18,5	76,9	
8	58,1	57,2	08,5		531,9	531,0	14,4	67,0	
9	54,7	53,6	499,1	498,6			09,5		
10	50,9	49,5	89,4	88,5					
11	46,5	45,2	79,1	77,9					
12			68,3	67,0					
13			57,2	55,6					
14				44,2					

Tabelle 2 β(16,0)

J-½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}	R_{21}	β(17,0) R_{11}	β(17,0) P_{11}
0	60316,1		313,2					61077,4	
1	16,1	308,2	11,3	250,8		245,9		77,4	61069,8
2	14,6	02,9	08,2	49,6	237,5	42,3		75,2	63,9
3	11,8	296,0	02,9	46,5	30,4	37,5		72,0	57,0
4	07,5	87,9	296,7	42,3	22,0	31,2	363,0	67,1	48,7
5	01,9	78,4	89,1	36,6	12,3	23,2	58,4	60,9	38,7
6	295,0	67,4	80,0	29,5	01,0	14,1	51,6	53,0	27,0
7	86,9	55,1	69,9	21,0	188,3	03,6	43,7	43,9	14,0
8	77,1	41,5	58,3	11,1	74,3		34,8	33,0	60999,7
9	66,5	26,5	45,4	00,2	59,1		24,7	21,0	83,6
10	54,3	10,5		187,6	42,5			07,0	66,2
11	41,0	192,9							
12	26,5	74,2							
13		54,0							
14		32,8							

Tabelle 2 — $\beta(18,0)$

J-½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{21}	P_{21}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}
0	61865,4		862,5			800,6		795,5
1	65,4	857,3	60,5			798,8	786,8	92,0
2	64,3	52,2	57,3		906,8	95,5	80,0	86,8
3	61,8	45,4	52,2		00,4	91,4	71,5	80,0
4	58,3	37,6	46,5		891,6	85,5	61,4	72,7
5	53,9	28,2	39,7	906,8	82,4	78,9	49,9	
6	48,8	18,2		01,4	71,9	71,5	37,4	
7	43,7	07,1		894,8	60,5		23,8	
8	38,7	795,5			47,4		09,5	
9	34,3	83,5			34,3			
10	31,3	72,1						
11		61,0						
12		51,0						

Tabelle 2 — $\beta(19,0)$

J-½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	R_{22}	P_{22}	Q_{22}
0	62591,5					
1	91,5		586,3	533,2		528,4
2	88,4	578,0	82,6	30,8	519,9	24,4
3	85,0	70,8		27,2	12,4	19,1
4	79,7	62,1		21,9	03,2	11,5
5	73,2	51,7		15,2	493,1	
6	65,0	39,9		06,2	80,7	
7	56,2	26,3			67,5	
	53,9					
8	42,9	11,5			51,3	
9	29,6	496,1				
		93,8				
10	15,2	76,0				
11		56,1				
12		34,8				

Tabelle 2 — $\delta(0,0)$

J-½	R_{11} cc	R_{11} dd	P_{11} cc	P_{11} dd	R_{21} cd	R_{21} dc	P_{21} cd	P_{21} dc	R_{22} cc	R_{22} dd	P_{22} cc	P_{22} dd	R_{12} cd	R_{12} dc	P_{12} cd	P_{12} dc
0	52380,3				52391,1								52266,2			
1	86,0				93,9				52274,2				68,8		52247,0	
2	89,1		52366,9		97,9		52377,6		77,7		52257,5		68,8		45,6	
3	89,1		65,9		405,1	404,7	73,9		284,6	284,2	53,5		270,0	269,6	41,2	
4	90,7		62,2		13,6	12,9	71,1		92,7	92,0	50,1		74,2	73,7	34,2	
5	395,5	395,1	55,7		22,9	22,1	371,6	371,1	301,6	300,7	250,1	249,8	79,4	78,6	228,7	228,5
6	401,4	400,7	50,7		32,9	31,8	73,4	72,7	11,0	09,8	51,3	50,8	85,3	84,2	26,0	25,4
7	08,0	07,1	348,7	348,3	43,7	42,2	76,1	75,3	21,2	19,5	53,5	52,5	92,0	90,2	24,3	23,4
8	15,4	14,1	48,0	47,1	55,1	53,2	79,5	78,4	31,6	29,8	56,1	54,8	99,1	97,3	23,4	22,4
9	23,3	21,7	48,0	47,1	67,2	64,9	83,5	82,1	42,7	40,7	59,1	57,6	306,8	304,7	23,4	21,8
10	32,1	30,2	48,3	47,1	79,7	77,2	88,1	86,2	54,5	52,4	63,0	61,2	15,2	12,7	23,4	21,8
11	41,4	39,2	50,0	48,3	93,0	90,0	93,9	91,1	66,9	64,5	67,2	65,0	24,1	21,2	24,3	22,4
12	51,3	48,6	51,9	50,0	507,1	503,5	99,8	97,0			72,1	69,6	33,4	30,4	26,0	23,4
13	61,9	58,9	54,5	52,4	21,6	17,6	406,0	403,1			77,7	75,4	43,2			25,2
14	73,1	69,6	57,8	55,1	36,8	32,4	13,6	10,2								
15	85,1	80,9	61,7	58,6	52,7	47,6	21,7	17,4								
16	97,6	93,0	65,9	62,9	69,1	63,5										
17	510,7	505,5	71,6	67,3												
18	24,5	18,7	77,6	73,4												
19			83,5	78,4												

Tabelle 2 $\delta(1,0)$

J-½	R_{11} cc	R_{11} dd	P_{11} cc	P_{11} dd	R_{21} cd	R_{21} dc	P_{21} cd	P_{21} dc	R_{22} cc	R_{22} dd	P_{22} cc	P_{22} dd	R_{12} cd	R_{12} dc	P_{12} cd	P_{12} dc
0	54692,6				54699,2											
1	95,1				706,4	705,9			54586,2							
2	98,4		54679,2		13,4	13,0	54685,7		93,1				578,2	577,6	54599,2	
3	702,1	701,7	75,1		21,2	20,7	86,2		600,7	600,3			81,5	81,0	54,6	
4	06,4	05,9	71,5		29,4	28,7	687,1	686,6	08,5	07,9			85,7	85,2	50,7	
5	11,1	10,6	68,6		38,2	37,2	87,8	87,4	16,8	15,9			90,0	89,4	47,2	
6	16,6	15,8	666,4	666,0	47,5	46,3	89,3	88,6	25,5	24,4	54567,5		94,7	93,9	544,3	544,0
7	22,4	21,8	64,5	64,0	57,4	55,8	91,4	90,4	34,6	33,2	568,7	567,8	99,9	98,9	41,8	41,3
8	28,7	27,8	63,5	62,3	67,5	65,7	94,1	92,6	43,9	42,3	70,5	69,4	605,5	604,3	39,7	38,9
9	35,8	34,3	62,3	61,5	78,2	76,0	97,0	95,5	53,7	51,9	72,7	71,4	11,5	09,9	38,1	37,0
10	43,1	41,3	62,3	61,0	89,4	86,8	700,7	99,2			75,4	73,6	18,0	15,9	37,0	35,5
11	50,9	48,7	62,3	61,0	800,8	97,9	04,7	702,1	74,3	71,5	78,2	76,2	24,4	22,3	35,5	34,5
12	58,9	56,5	63,2	61,0	12,5	809,2	09,1	06,4	84,9	81,8	81,5	79,2	31,6	28,8	35,5	33,6
13	67,5	64,4	64,0	61,5	24,2	20,7	13,4	11,1			85,2	82,3	38,8	35,7	35,5	32,8
14	76,0	72,4	65,6	63,2	36,0	31,7	18,8	15,8			89,0	85,7	45,8	42,2	36,0	32,7
15	84,0	80,3			47,1	42,7	24,0	20,7					52,7	49,0	36,0	32,7
16	91,6	87,8			56,4	52,0	28,7	25,0					58,9	54,8	36,0	32,7
17	97,9	93,8			62,7	58,8	33,2	28,7						59,5	36,0	32,7
18	800,8	97,1			63,7	60,7	35,8	31,7							36,0	31,5
19							35,8	31,7							33,0	29,3
20							30,0	27,0							27,8	24,1

Tabelle 2 $\delta(2,0)$

J-½	R_{11} cc	R_{11} dd	P_{11} cc	P_{11} dd	Q_{11}	R_{21} cd	R_{21} dc	P_{21} cd	P_{21} dc	R_{22} cc	R_{22} dd	P_{22} cc	P_{22} dd	Q_{22} cc	Q_{22} dd	R_{12} cd	R_{12} dc	P_{12} cd	P_{12} dc
0	57073,4				069,1	57096,8													
1	75,6		57063,9		68,4	99,5				56979,5				56971,5					
2	77,5		60,0		67,4	102,3		57083,5		82,0		56963,1		71,0		56957,1			
3	78,8		55,4		65,7	05,0		79,4		84,4		58,5		70,0		58,5			
4	79,9		50,6		63,9	07,6		75,6		986,8	986,5	54,4		68,9		58,7		56929,8	
5	80,8		45,4		61,5	110,5	110,2	71,6		89,0	88,7	50,0		67,8		59,2		24,0	
6	081,6	081,4	39,8		59,1	13,4	12,7	67,6		91,3	90,5	945,4	945,1	966,6	966,1			17,6	
7	81,9	81,6	33,9			16,3	15,4	063,9	063,2	93,5	92,7	40,9	40,5	65,4	64,7	959,2	958,7	17,6	
8	82,6	82,2	028,1	027,8		19,5	18,3	60,0	59,1	95,8	94,7	36,2	35,6	64,1	63,1	59,2	58,5	11,1	
9	83,2	82,2	21,8	21,4		22,7	21,3	56,0	55,4	98,2	96,8	31,6	30,7			59,2	58,1	904,3	904,0
10	83,9	82,9	15,8	15,1		26,3	24,5	52,6	51,3	57000,7	99,1	27,0	25,9			59,2	57,7	897,4	896,7
11	84,8	83,2	09,6	08,8		30,2	28,0	49,2	47,7	03,6	001,5	22,7	21,3					90,5	89,5
12	85,7	83,9	03,6	02,4		34,3	32,3	45,9	44,1	06,7	04,6	18,3	16,6					83,4	82,2
13	86,9	84,8	56997,7	996,2		38,7	36,1	43,3	40,8	09,6	07,2	14,4	12,2					76,2	74,9
14	88,2	85,7	92,0	90,1		43,9	40,1	40,8	38,5	13,7	10,0	10,5	08,5					69,1	67,4
15	90,2	87,1	86,5	84,4		48,6	44,6	38,5	35,4	16,8	13,1	06,8	04,3					62,1	60,0
16	92,1	88,2	81,1	78,8		53,5	48,6	36,9	33,0	20,3	15,8	04,0	00,3					55,2	53,0
17	93,1	89,3	76,5	73,3		58,0	53,5	34,7	30,9	23,6	19,2	00,3	896,7					48,5	45,9
18	94,7	90,6	71,5	67,8		62,7	58,0	33,0	29,1	26,7	21,8	896,7	92,6					42,2	38,8
19	95,8	91,5	66,1	62,3		66,8	61,7	30,9	26,7			93,4	89,1					35,4	31,7
20			60,8	56,8		70,2	64,7	29,1	24,7			89,5	85,2					28,6	24,7
21			55,4	51,1				26,7	21,4									21,8	17,6
22									17,6									14,5	10,0

Tabelle 2 $\delta(3,0)$

J-½	R_{11}	P_{11}	Q_{11}	cd R_{21} dc	P_{21}	cc R_{22} dd	cc P_{22} dd	Q_{22}	R_{12}	P_{12}
0				59242,8						
1	59212,6			45,5		59125,4		118,4	092,8	
2	13,1			47,3	229,7	26,8		16,9	92,8	
3	13,1	192,5	197,8	47,8	25,2	27,6	59104,6	14,9	92,1	071,8
4	12,1	86,3	93,7	48,4	20,4	27,6	099,3	12,1	91,0	65,1
5	10,1	79,5	88,3	48,4	14,4	26,8	93,1	08,8	88,6	57,9
6	07,3	71,8		47,3	08,0	25,4	86,2	04,6	85,4	49,5
7	03,9	63,3		45,5	02,1	22,8	78,6	099,3	80,9	40,4
8	199,4	53,9		243,1 242,8		19,4	70,3			30,1
9	93,7	43,6		39,4 39,0		14,9	61,2			19,0
10	86,9	32,4		34,9 34,2		109,4 108,8	50,3			
11	79,5	20,2		29,1 28,4		02,4 02,0	39,1			
12	70,1	06,7		22,1 21,2		094,4 093,5	026,9 026,2			
13	59,6	092,1				84,7 84,1	13,2 12,6			
14	47,7	76,4					58998,7 998,2			
15	34,2	59,0					81,7 80,9			
16		40,4								
17		21,0								

Tabelle 2 $\delta(4,0)$

J-½	cc R_{11} dd	cc P_{11} dd	cd R_{21} dc	cd P_{21} dc	cc R_{22} dd	cc P_{22} dd	cd R_{12} dc	cd P_{12} dc
0	61725,2		61735,2					
1	27,6		41,0		61621,2		61607,7	
2	30,2	61711,9	46,5	61722,4	26,4	61602,3	09,9	61591,7
3	32,5	07,5		20,9		00,5	12,3	86,9
4	735,2 734,6	03,4	752,5 752,1	20,0	632,0 631,7	598,9	614,2 613,4	82,4
5	37,4 36,7	699,1	58,6 57,7	19,2	37,5 36,6	597,4 597,0	16,0 14,8	577,7 577,4
6	39,7 38,6	94,7	64,2 63,1		42,6 41,5	96,2 95,2		72,9 72,2
7	41,0 39,7	690,6 690,0	69,4 68,0	718,4 717,4	47,3 46,2	94,4 93,2		67,8 66,7
8	41,0 39,7	85,9 85,1	74,1 72,7	17,4 16,1	51,3 49,8	92,3 90,7		
9	39,7 38,6	80,7 79,6	77,5 76,1	16,1 14,5	55,1 52,8	89,4 88,0		
10		74,4 73,1		13,6 11,9		85,6 84,1		
11		66,1 64,9						

$\delta(3,0)$-Bande ist infolge der Störung, wie schon erwähnt, β-ähnlich rot abschattiert, während sich die Struktur von $\delta(4,0)$ wieder derjenigen der ersten δ-Banden nähert.

Als Ergebnis der Rotationsanalysen der δ-Banden steht fest, dass deren oberer Zustand C nicht wie bisher angenommen ein $^2\Sigma$-Term sondern ein $^2\Pi$-Term ist. Dieser $C^2\Pi$-Term der δ-Banden und der $B^2\Pi$-Term der β-Banden, deren Schwingungsniveaus paarweise koinzidieren, stören sich gegenseitig. Es liegt der Fall einer *homogenen* Störung im Sinne der Mullikenschen Terminologie[18]) vor. Die beiden $^2\Pi$-Zustände des angeregten NO-Moleküls unterscheiden sich voneinander sehr stark. Im $B^2\Pi$-Zustand ist die Bindung im Molekül durch zwei $v\pi$-Elektronen gelockert,

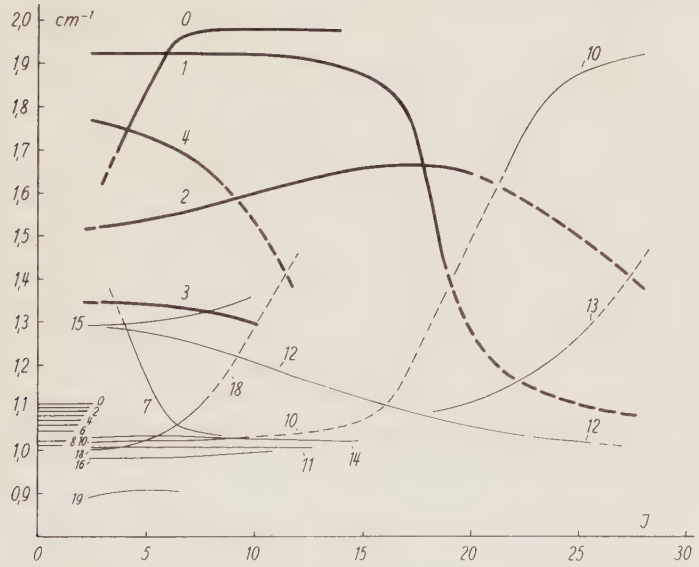


Fig. 2

$B(J) = \dfrac{\Delta F_1' + \Delta F_2'}{8\,(J+\frac{1}{2})}$ für die δ-Banden (dicke Linien) und β-Banden (dünne Linien). Die gestrichelten Teile der Kurven sind nicht gemessen. Die Zahlen bedeuten die Vibrationsquantenzahlen.

der Kernabstand ist gross (r_e = 1,417 A), die Vibrationsfrequenz klein (ω_e = 1036 cm ^{1}), im $C^2\Pi$-Zustand dagegen fehlen lockernde Elektronen, der Kernabstand ist klein (r_e = 1,062 A), die Vibrationsfrequenz gross (ω_e = 2395 cm^{-1}), beide nahe den Werten für das Ion NO^+. Die Potentialkurven der beiden Zustände gelangen im Bereich der Schwingungsanregung zum Schnitt, so dass die Analyse der δ- und β-Banden ins Einzelne gehenden Einblick in den Termverlauf im Kreuzungsgebiet liefert.

Einen Überblick über die Verhältnisse im Störungsgebiet gewinnt man unmittelbar aus den gemessenen Wellenzahlen der Linien durch die Bildung der Termdifferenzen

$$R(J) - P(J) = F'(J+1) - F'(J-1) = \Delta_2 F'(J) = 4\, B'(J + {}^1/_2)$$

oder

$$B' = \frac{\Delta_2 F'(J)}{4\,(J+\frac{1}{2})}.$$

Im vorliegenden Falle von Dublett-Termen kann über die Dublettaufspaltung gemittelt werden durch die Bildung von

$$B' = \frac{\Delta_2 F_1' + \Delta_2 F_2'}{8\,(J+\frac{1}{2})}$$

wobei F_1 und F_2 die Terme der beiden Dublettkomponenten bedeuten.

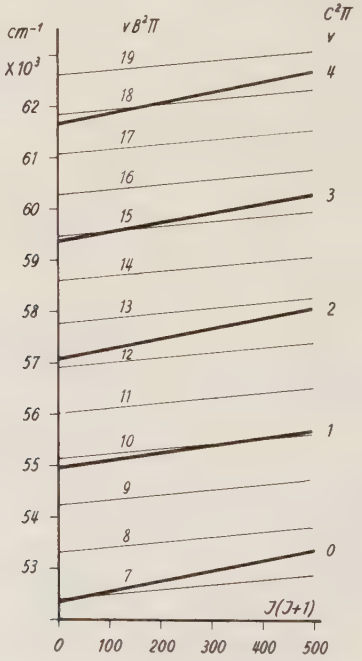


Fig. 3

Das System der sich schneidenden $\delta(C\,^2\Pi)$ und $\beta(B\,^2\Pi)$-Terme unter Weglassung der Störung.

Figur 2 stellt die Ergebnisse für alle Banden des δ- und β-Systems dar. Ungestörte Banden zeichnen sich durch einen von J unabhängigen B-Wert aus, also eine $B(J)$-Kurve parallel zur J-Achse. B ist dann B_v, die Rotationskonstante des Schwingungsniveaus, die mit wachsendem v etwas kleiner wird. Für die Reihe der Schwingungsterme ergibt sich eine

Folge von parallelen Geraden, wie es Figur 2 für die ersten ungestörten β-Niveaus zeigt. Vom Einfluss der Zentrifugalkraft, also der Mitberücksichtigung der D-Werte in der Rotationsenergie kann abgesehen werden. Für gestörte Banden ergeben sich keine B-Geraden, vielmehr charakteristische $B(J)$-Kurven. Die Rotationsterme solcher Niveaus können nicht in der üblichen Weise formelmässig dargestellt werden, höchstens in Teilbereichen der J-Skala, wie etwa in $\delta(v=0)$ für $J>7$, in $\delta(v=1)$ für $J<11$ oder in $\beta(v=10)$ für $J<11$.

Der Verlauf der $B(J)$-Kurven zeigt, dass sich $\delta(v=0)$ und $\beta(v=7)$ für kleine J gegenseitig stören, $\delta(v-1)$ und $\beta(v-10)$ für mittlere J, $\delta(v=2)$ wird am Anfang von $\beta(v=12)$, am Ende von $\beta(v=13)$ gestört. $\delta(v=3)$ und $\beta(v=15)$ stehen über den ganzen gemessenen J-Bereich in starker Wechselwirkung, während schliesslich im Paar $\delta(v=4)$ und $\beta(v=18)$ die Störung am Ende anwächst.

Die Kurven der Figur 2 sind differenzierte Rotationsenergie-Kurven $F(J)$. Sie bringen die Abweichungen der $F[J(J+1)]$-Kurve von der Linearität in $J(J+1)$ besonders deutlich zum Ausdruck. Zum Zwecke einer Übersicht sind in Figur 3 die δ- und β-Termkurven unter Weglassung der Störung graphisch dargestellt. Figuren 4–8 geben in grösserem Maßstab den Verlauf der beobachteten Termkurven im Bereich der sich gegenseitig störenden Termpaare und zwar für die beiden Dublettkomponenten der $^2\Pi$-Terme getrennt. Die ungestörten Termgeraden sind als dünne Geraden eingezeichnet. Man erkennt, dass die Stärke der gegenseitigen Störung, wie dies ja schon der blosse Anblick der fraglichen Banden zeigte, in den fünf Störungsbildern sehr verschieden ist. Die Störung ist maximal für das Paar $\delta(v-3)$ und $\beta(v=15)$. In der Termhöhe dieser koinzidierenden Niveaus muss offenbar der Schnittpunkt der beiden $^2\Pi$-Potentialkurven liegen. Die quantitative Auswertung dieser Störungsbilder folgt in § 5.

Figur 9 zeigt den Verlauf der beobachteten Λ-Aufspaltung in den $C^2\Pi$-Termen.

Dass alle δ-Banden und auch alle β-Banden, soweit sie im Bereich der δ-Banden liegen, gestört sind, kommt auch in Figur 10a zum Ausdruck, in der $\Delta G_{\mathrm{obs}}(v)$, die Abstände der beobachteten Schwingungsniveaus als Funktion von v aufgetragen sind. Man erkennt in ihr starke Vibrationsstörungen, wie sie zum Teil schon in den in § 1 zitierten älteren Arbeiten festgestellt worden sind.

Die homogene Störung $B^2\Pi - C^2\Pi$

§ 5. Um die paarweise gegenseitige Störung zwischen den B- und C-Termen genauer zu behandeln, bezeichnen wir die hypothetischen

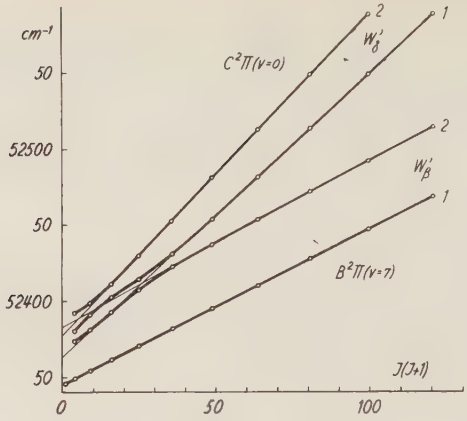


Fig. 4.

Die Störung $\delta(0,0) + \beta(7,0)$.

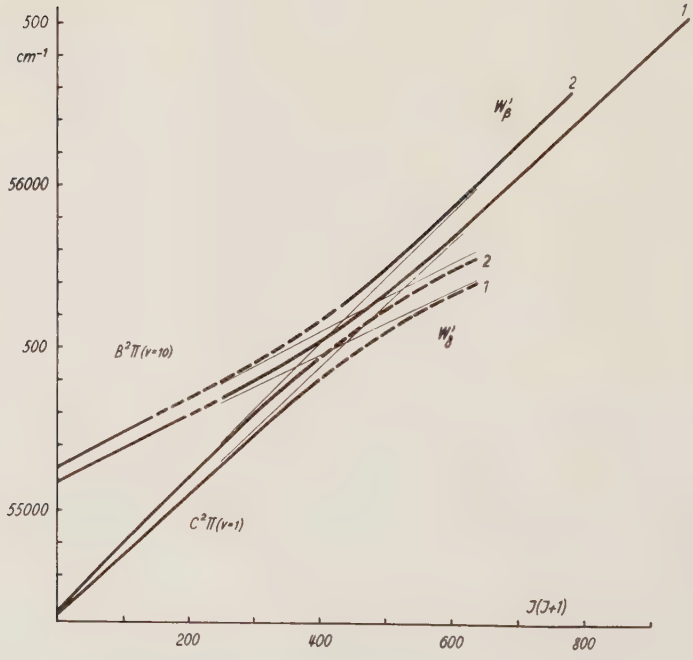


Fig. 5.

Die Störung $\delta(1,0) + \beta(10,0)$.

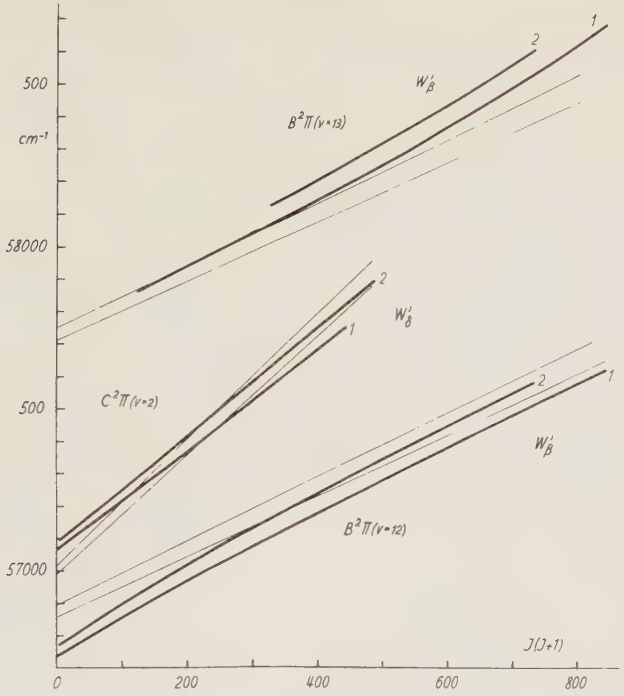


Fig. 6
Die Störung $\delta(2,0)+\beta(12,0)+\beta(13,0)$.

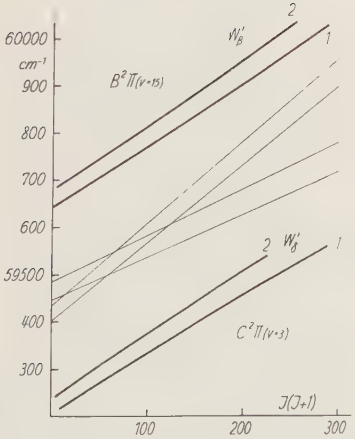


Fig. 7
Die Störung $\delta(3,0)+\beta(15,0)$.

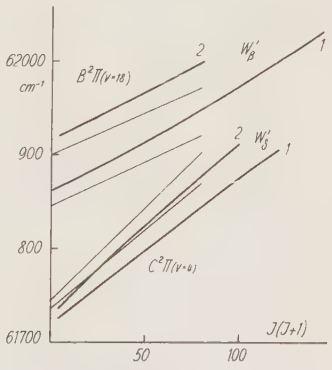


Fig. 8
Die Störung $\delta(4,0)+\beta(18,0)$.

*

«ungestörten» Rotationsterme mit W^*_β bzw. W^*_δ und die zugehörigen Rotationskonstanten mit B^*_β bzw. B^*_δ, wobei hiefür gelten soll:

$$\begin{aligned} B\text{-Term:} \quad & W_\beta(J) = F_\beta(J) + T^*_\beta = B^*_\beta\, J(J+1) + T^*_\beta \\ C\text{-Term:} \quad & W_\delta(J) = F_\delta(J) + T^*_\delta = B^*_\delta\, J(J+1) + T^*_\delta \end{aligned} \tag{1}$$

$$W_\delta(0) - W_\beta(0) = T^*_\delta - T^*_\beta = C$$

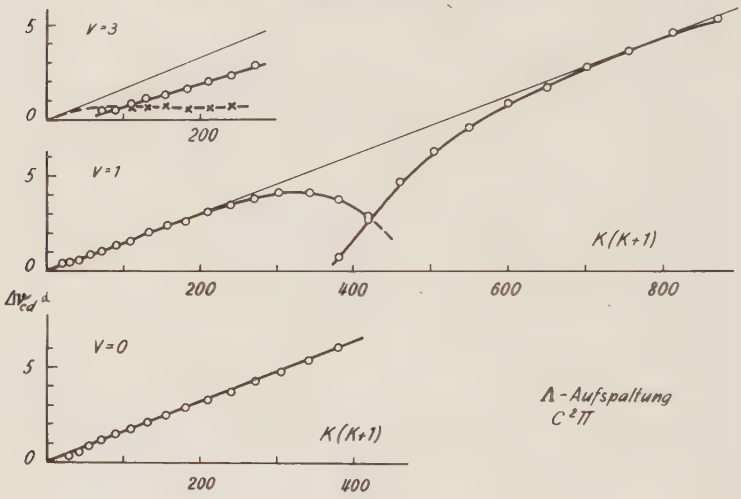


Fig. 9

Die Λ-Aufspaltung der $C^2\Pi$ ($v = 0$, 1 und 3)-Terme.

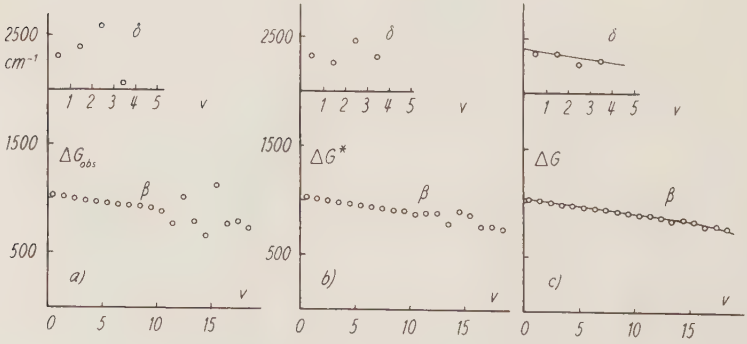


Fig. 10

Schwingungsstufen ΔG im δ- und β-System.

a) Beobachtet (Vibrationsstörung) b) nach der ersten Entstörung
c) nach der zweiten Entstörung

Aus der Störung zwischen den Termen gleichen J resultieren die beobachteten gestörten Terme W_β' bzw. W_δ', für die nach der Störungstheorie gilt

$$\left.\begin{matrix} W'_\beta(J) \\ W'_\delta(J) \end{matrix}\right\} = \frac{W_\beta + W_\delta}{2} \pm \sqrt{\frac{(W_\delta - W_\beta)^2}{4} + H^2}\,. \tag{2}$$

$W_\beta'(J)$ und $W_\delta'(J)$ sind durch die Kurven der Figuren 4–8 dargestellt, wobei dasjenige der beiden Kurvenpaare mit δ bezeichnet wird, das bei $J = 0$ die grössere Steigung hat*). Es gilt also in Formel (2) für W_δ' das Minuszeichen, wenn der Schnittpunkt der ungestörten Kurven W_β und W_δ bei positivem $J(J+1)$ liegt ($C < 0$), das Pluszeichen, wenn er bei negativem $J(J+1)$ liegt ($C > 0$). Vgl. Figur 11.

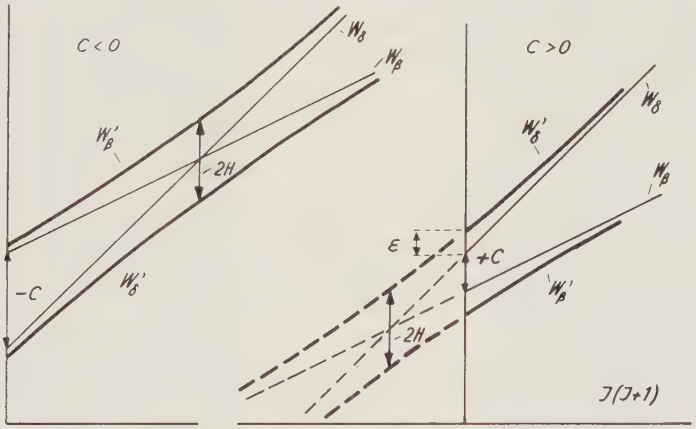


Fig. 11
Gestörte (W') und ungestörte (W)-Rotationstermkurven.

H ist der Störungsparameter. Falls H von J nicht abhängt, so sind nach Formel (2) die $W'[J(J+1)]$-Kurven Hyperbeln. Die Differenz zwischen den gestörten Termen

$$\Delta W' = W'_\delta - W'_\beta = \sqrt{(W_\delta - W_\beta)^2 + 4H^2} \tag{3}$$

wird minimal an der Kreuzungsstelle der ungestörten Terme ($W_\beta = W_\delta$) und beträgt dort

$$|\Delta W'_{\mathrm{Min}}| = 2H. \tag{4}$$

Bildet man mit Formel (1)

$$\sqrt{\Delta W'^2 - 4H^2} = (B^*_\delta - B^*_\beta)\,J(J+1) + C\,, \tag{5}$$

*) Die Benennung der Banden $\delta(3,0)$ und $\beta(15,0)$ ist deshalb gegen früher[9] [13] vertauscht worden.

so wird dieser Ausdruck linear in $J(J+1)$ und man erhält für $J = 0$ die Termdifferenz C. Die Grösse C kann im Falle, dass die Störung klein ist, auch direkt durch gradlinige Extrapolation der W'-Kurven aus dem praktisch ungestörten Gebiet heraus ermittelt werden.

Wenn $\Delta W'_{\text{Min}}$ nicht in das beobachtete J-Gebiet fällt, so kann nach Formel (3) und (1)

$$\frac{\Delta W'^2 - \Delta W'_0{}^2}{J(J+1)} = (B^*_\delta - B^*_\beta)^2 J(J+1) + 2C(B^*_\delta - B^*_\beta), \qquad (6)$$

worin $\Delta W_0' = \Delta W'(J=0)$ ist, als Funktion von $J(J+1)$ aufgetragen werden. Dabei wird $\Delta W_0'$ so bestimmt, dass eine Gerade entsteht, deren Steigung dann $(B^*_\delta - B^*_\beta)^2$ gibt, und aus der man für $J = 0$ die Grösse $2C(B^*_\delta - B^*_\beta)$ und somit C erhält. Den Störungsparameter berechnet man alsdann aus

$$H = \sqrt{\frac{\Delta W_0'^2 - C^2}{2}} \qquad (7)$$

Im Falle der hier vorliegenden Dublett-Terme mit der Aufspaltung A gelten diese Formeln sinngemäss entweder für die Mittelwerte der beiden Dublettkomponenten, wenn $H \gg A$, oder für die Komponenten einzeln, wenn $H \ll A$. Im Fall $H \approx A$ können keine einfachen Formeln angegeben werden.

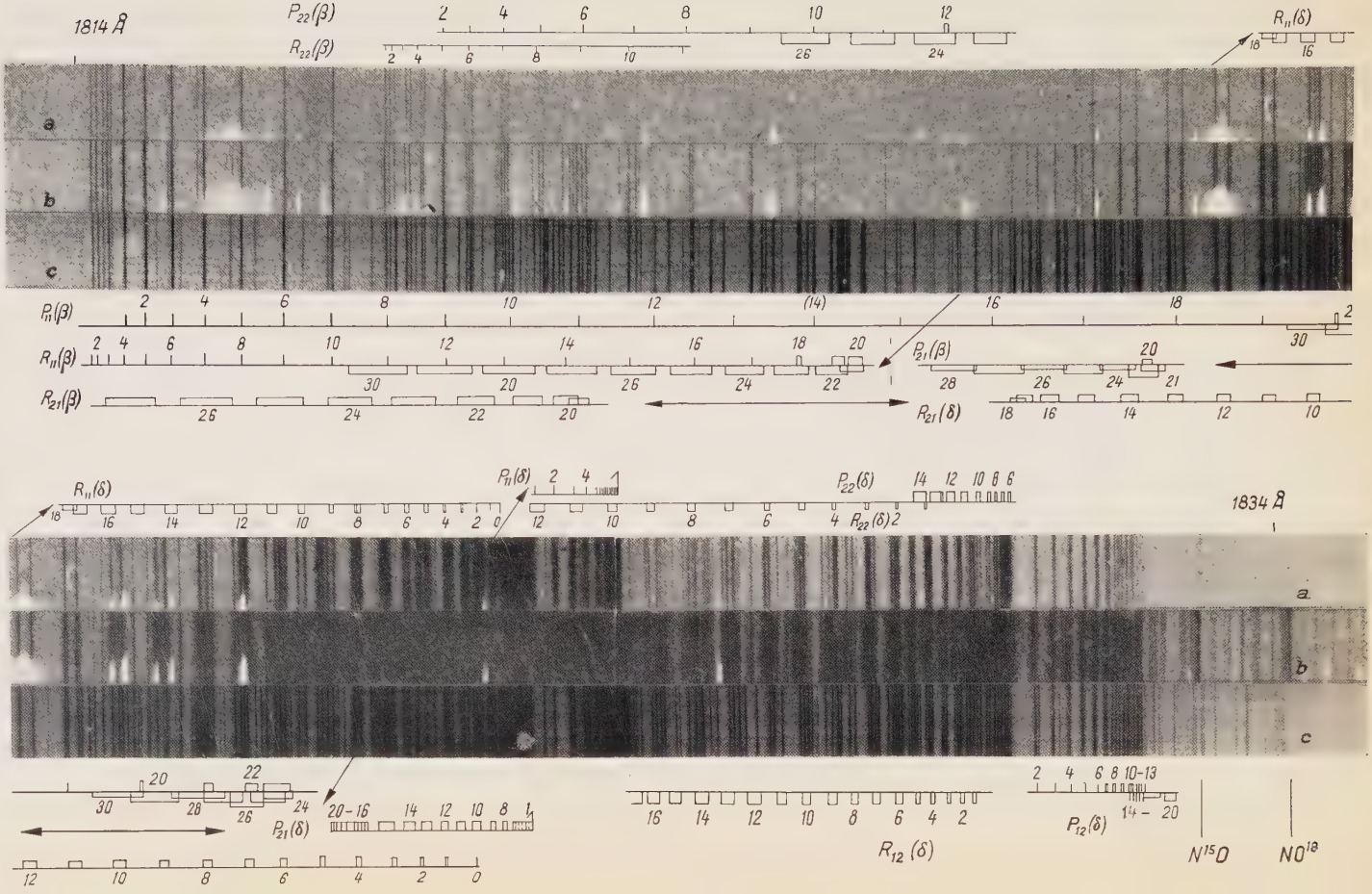
Fig. 12 (S. 245)

Die Störung zwischen den Banden $\delta(1,0)$ und $\beta(10,0)$.

a) −180 °C, 0,8 mm Hg, 26,5 cm, (3-m-Gitter, 4. Ordn. Ottawa)
b) −180 °C, 4 mm Hg, 26,5 cm, (3-m-Gitter, 4. Ordn. Ottawa)
c) 27 °C, 2 mm Hg, 45 cm, (6-m-Gitter, 3. Ordn. Chicago, P. G. Wilkinson).

Die Pfeile weisen auf die Stellen, an denen die Zweige der δ-Bande in den Zweigen der β-Bande ihre Fortsetzung finden. Der Sprung im Spektrum entspricht $\approx 2\,H - 110\ \text{cm}^{-1}$.

Die Zahlen bedeuten $J - \frac{1}{2}$.


1814 Å
$P_{22}(\beta)$
$R_{22}(\beta)$
$R_{11}(\delta)$
a
b
c
$P_{11}(\beta)$
$R_{11}(\beta)$
$R_{21}(\beta)$
$P_{21}(\beta)$
$R_{21}(\delta)$
$P_{11}(\delta)$
$P_{22}(\delta)$
$R_{22}(\delta)$
1834 Å
$P_{21}(\delta)$
$R_{12}(\delta)$
$P_{12}(\delta)$
$N^{15}O$
NO^{18}

Die Tabelle 3 enthält die rechnerische Auswertung der paarweisen gegenseitigen Störungen. Das erste Paar $\delta(0,0) + \beta(7,0)$ ergibt einen H-Wert von zirka 8 cm^{-1} und die Störung umfasst nur wenige Rotationsniveaus. Die Genauigkeit der Messungen ist nicht hinreichend gut, um im

Tabelle 3

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
δ	β	H	C	$J_0(J_0+1)$	ε	$(B_\delta)_{obs}$	$(B_\beta)_{obs}$	$(\Delta B)_{obs}$	$B^*_\delta + B^*_\beta$	$B^*_\delta - B^*_\beta$	B^*_δ	B^*_β
0	7	8	+ 4		+ 6	1,981	1,034				1,981	1,034
1	10	55	−409	+441	− 7	1,929	1,024	0,019	(2,952)	(0,944)	1,948	1,005
2	12	158	+80	− 97	+123	—	—		2,787	0,825	1,806	0,981
3	15	219	− 48	+ 64	−196	(1,36)	(1,28)		2,650	0,748	1,699	0,951
4	18	49	−134	+138	− 16	1,77	1,00	0,09	(2,75)	—	1,86	0,91

Störungsgebiet den Verlauf der Termkurven der einzelnen Dublettkomponenten mit Sicherheit festzulegen. Es wäre von Interesse, diese Störung mit wesentlich grösserer Dispersion zu untersuchen und die ganze

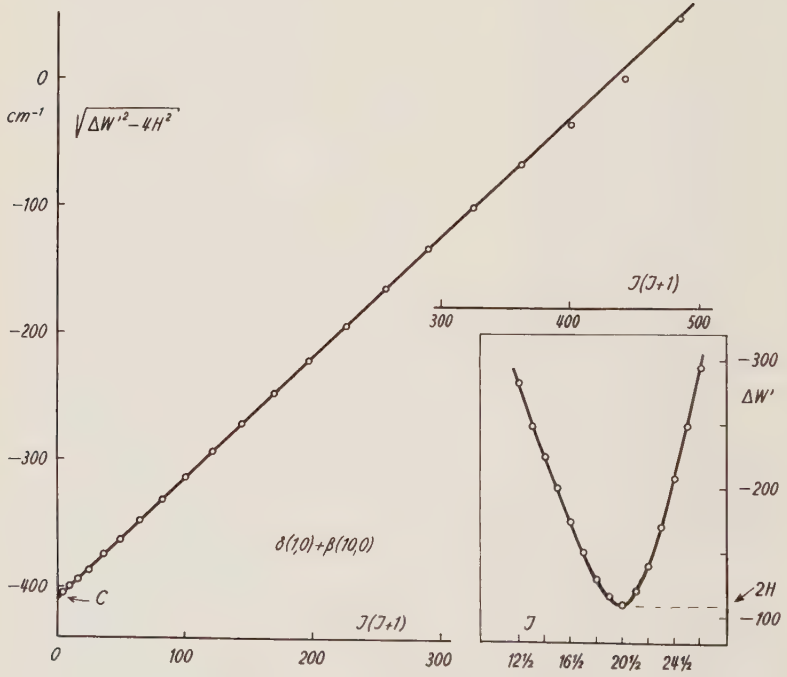


Fig. 13

Auswertung der gegenseitigen Störung $\delta(1,0) + \beta(10,0)$ nach Formel (5) und Abstand $\Delta W'$ der beobachteten Terme.

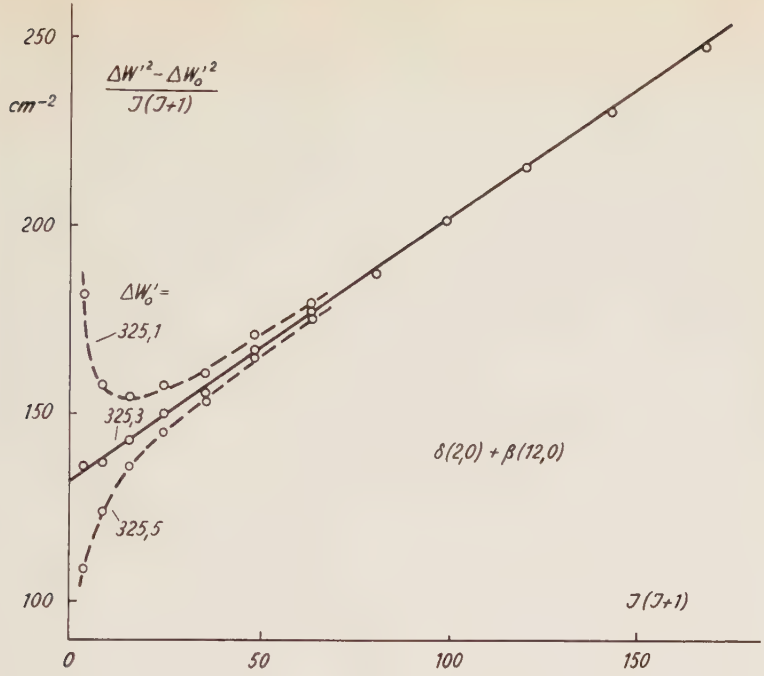


Fig. 14

Auswertung der gegenseitigen Störung $\delta(2,0) + \beta(12,0)$ nach Formel (6).

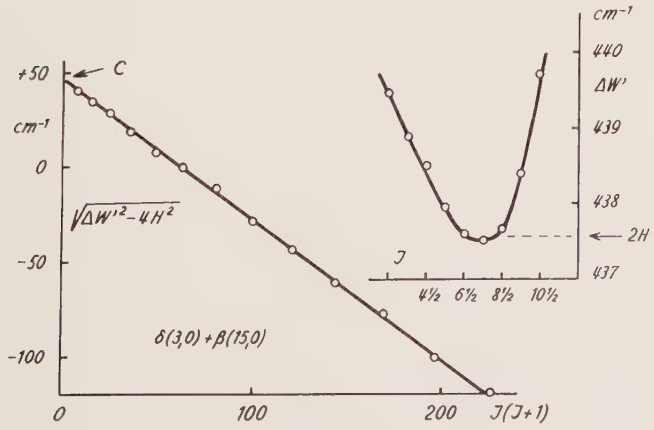


Fig. 15

Auswertung der gegenseitigen Störung $\delta(3,0) + \beta(15,0)$ nach Formel (5).
(Die Vorzeichen am Ordinaten-Maßstab sind umzukehren.)

Störungsmatrix zu bestimmen. Die B^*-Werte der Tabelle 3 ergaben sich aus dem ungestörten Verlauf für $J > 7$, und der C-Wert durch Extrapolation aus diesem Gebiet. Das zweite Paar $\delta(1,0) + \beta(10,0)$ bildet ein besonders schönes Störungsbeispiel, wie es wohl bisher nie beobachtet worden ist. Die Figuren 5 und 12 illustrieren im einzelnen diese Störung. Man erkennt in der Gegend von $J = 19$ den vollständigen Übergang der Zweige von $\beta(10,0)$ (niedrige J) in rücklaufende Teile (hohe J), die die Fortsetzung von $\delta(1,0)$ bilden. Er ist mit einer starken Intensitätszunahme verknüpft und hat Kantenbildungen (zum Beispiel R_{11}-Zweig bei $\lambda = 1821{,}5$ A) zur Folge. Umgekehrt verlieren die Zweige der δ-Bande an der Störstelle an Intensität. Rücklaufende Teile hohen J, die $\beta(10,0)$ fortsetzen würden, können nicht beobachtet werden. Figur 13 zeigt die Auswertung nach Formel (5). Die für $J > 11^1/_2$ fehlenden W_δ'- bzw. W_β'-Werte wurden durch gradlinige Extrapolation der als Funktion von

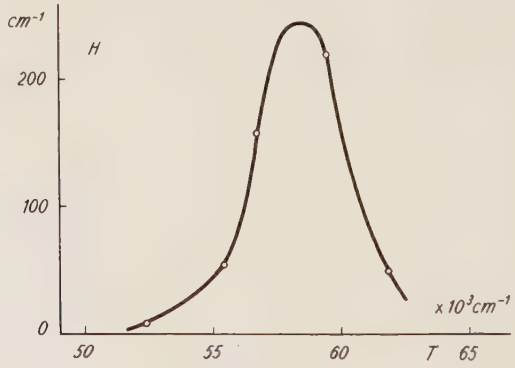


Fig. 16

Störungsparameter H als Funktion der Termhöhe.

$J(J+1)$ aufgetragenen $W_\beta' + W_\delta'$ und Subtraktion der gemessenen W_β', bzw. W_δ' berechnet. Figur 14 zeigt die Auswertung nach Formel (6) am dritten Paar $\delta(2,0) + \beta(12,0)$ und Figur 15 die Bestimmung der Störungsdaten wiederum nach Formel (5) für das am stärksten gestörte Paar $\delta(3,0) + \beta(15,0)$. Beim letzten Paar $\delta(4,0) + \beta(18,0)$ ist die Genauigkeit der Messdaten etwas geringer, jedoch resultiert eindeutig der hier wieder beträchtlich kleinere Störungsparameter $H = 49\ \mathrm{cm}^{-1}$.

Trägt man die Störungsparameter H, wie man sie aus den 5 Paaren erhält, als Funktion der Termhöhe auf, so ergibt sich Figur 16. Die H-Kurve zeigt ein ausgesprochenes Maximum. Auf der Termhöhe, die diesem Maximum entspricht, liegt der Schnittpunkt der beiden Potentialkurven $B\,^2\Pi$ und $C\,^2\Pi$, die sich gegenseitig stören.

Entstörung (1. Näherung)

§ 6. Kolonne 6 der Tabelle 3 enthält als

$$\varepsilon = {}^1/_2 \left[W'_\delta(0) - W'_\beta(0) - C \right] = \frac{C}{2} \left[\sqrt{1 + \frac{4 H^2}{C^2}} - 1 \right] \qquad (8)$$

Korrekturen (Störungsbeiträge) für die rotationslosen Terme, also Vibrationsstörungen, wie sie aus der paarweisen gegenseitigen Störung folgen. Addiert man dieselben zu den beobachteten β-Termen bzw. subtrahiert man sie von den δ-Termen und bildet man alsdann $\Delta G^*(v)$ aus dieser Reihe der «entstörten» Niveaus, so erhält man die in Figur 10b eingezeichneten Punkte. Diese neuen $\Delta G^*(v)$-Werte nähern sich wesentlich aber doch keineswegs vollständig einer glatten Kurve.

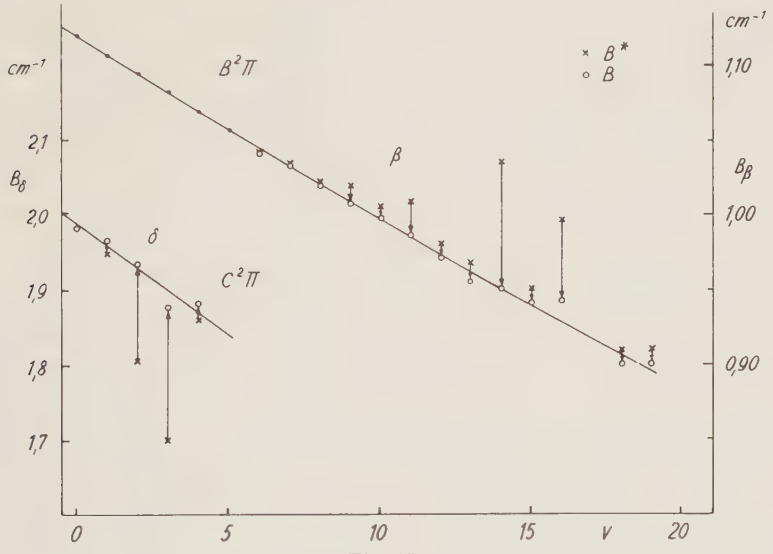


Fig. 17

Rotationskonstanten B_v der $B\,^2\Pi$- und $C\,^2\Pi$-Terme.
Die Kreuze geben die B_v* nach der 1. Entstörung, die Kreise die B_v nach der 2. Entstörung.

Tabelle 3 gibt in den Kolonnen 7 und 8 unter $(B_\delta)_{\text{obs}}$ und $(B_\beta)_{\text{obs}}$ B-Werte, wie sie direkt aus den Beobachtungen gewonnen werden, soweit die Rotationsterme eine nahezu ungestörte Folge bilden (vgl. Fig. 2). In Kolonne 10 sind Zahlen für $B^*_\delta + B^*_\beta$ gegeben, die man recht genau aus den Werten $F_\delta + F_\beta = (B^*_\delta + B^*_\beta)\, J(J+1)$ bestimmen kann. Für alle 5 Paare sind die Kurven $W_\delta'(J) + W_\beta'(J)$ als Funktion von $J(J+1)$ in weitem J-Bereich Geraden, da sich bei der Summation ja die wechselseitige Störung heraushebt. In Kolonne 11 sind Werte für $B^*_\delta - B^*_\beta$ angegeben, die man aus den Neigungen der Geraden, welche Formel (5)

(Fig. 13 und 15) bzw. Formel (6) (Fig. 14) darstellen, berechnen kann. Die Kolonnen 12 und 13 enthalten die «vorläufig entstörten» B-Werte B_δ^* und B_β^*. Für das erste Paar $\delta(0,0)-\beta(7,0)$, in dem die Störung klein ist, sind sie mit den Werten $(B_\delta)_{obs}$ bzw. $(B_\beta)_{obs}$ der Kolonnen 7 und 8 identisch. Für die stark gestörten Paare $\delta(2,0) + \beta(12,0)$ und $\delta(3,0) + \beta(15,0)$ sind sie aus den Summen und Differenzen der Kolonnen 10 und 11 berechnet. Für die Paare $\delta(1,0) + \beta(10,0)$ und $\delta(4,0) + \beta(18,0)$ erfolgte die Berechnung aus $(B_\delta)_{obs}$ bzw. $(B_\beta)_{obs}$ unter Addition bzw. Subtraktion der Korrektion

$$(\Delta B)_{obs} = \frac{B_\delta - B_\beta}{2}\left(1 - \frac{1}{\sqrt{1+4H^2/C^2}}\right) = \frac{B_\delta - B_\beta}{2}\,\frac{\varepsilon}{\varepsilon + C/2}\,. \qquad (9)$$

Diese Korrektion berücksichtigt die Differenz in der Steigung der $W[J(J+1)]$ und $W'[J(J+1)]$-Kurven bei $J = 0$. Im Falle des Paares $\delta(1,0) + \beta(10,0)$ erhält man übereinstimmende B^*-Werte auch aus den Summen und Differenzen (Kolonnen 10 und 11). In Figur 17 sind die B_δ^* und B_β^* als Kreuze eingetragen. Sie fügen sich nicht in eine regelmässige $B(v)$-Kurve ein, für alle β-Terme fallen sie zu hoch, für alle δ-Terme zu tief.

Tabelle 4 enthält in Kolonne 2 die Termwerte der Schwingungsniveaus von $B^2\Pi$ und $C^2\Pi$. Es sind die Mittelwerte der beiden Dublettkomponenten, als Nullpunkt ist das Niveau $v = 0$ des $X^2\Pi_{1/2}$-Grundzustandes genommen. Für die in diesem § besprochenen Niveaus paarweiser Wechselwirkung ist die Korrektur ε nach Formel (8) bzw. Tabelle 3 bereits erfolgt. Im Falle β ($v = 17$), wofür nur Linien der F_1-Dublettkomponente beobachtet sind, ist bei der Mittelung die F_2-Komponente durch Interpolation ergänzt worden. Das Niveau $\beta(v = 13)$, für das nur Linien $J \geqq 11^1/_2$ im Bereich der Wechselwirkung mit $\delta(v = 2)$ beobachtet sind, wurde wie folgt behandelt: Für $17^1/_2 \leq J \leq 20^1/_2$ liegen Linien für beide, sich gegenseitig störenden Niveaus vor. Daraus berechnet sich $B_{\delta 2}^* + B_{\beta 13}^*$ zu 2,757 cm $^{-1}$. Mit diesem Wert erhält man durch lineare Extrapolation Zahlen für die Summe $W_\delta' + W_\beta'$ im Bereich grösserer J und hieraus mit den bekannten W_β' die gesuchten Differenzen $\Delta W' = W_\delta' - W_\beta'$ bis nahe an den J-Wert maximaler Störung $\delta(2,0) + \beta(13,0)$ bei $J(J+1) \approx 800$. Es resultiert ein $\Delta W'_{\text{Min}}$, das im Einklang mit der H-Kurve (Fig. 16) steht. Es ergibt sich für

$$\sqrt{\Delta W'^2 - \Delta W'^2_{\text{Min.}}}$$

eine gute Gerade und man findet daraus $B_{\delta 2}^* - B_{\beta 13}^* = 0{,}832$ cm^{-1} und mit obigem Wert für die Summe schliesslich $B_{\delta 13}^* = 0{,}963$ cm^{-1}. An diesem Wert ist noch eine Zentrifugalkorrektion von $2\,D\,J(J+1) = -0{,}004$ cm^{-1} angebracht [$D = 4\,B^3/\omega^2 = 4 \cdot 10^{-6}$ cm^{-1}], um der Tatsache

Rechnung zu tragen, dass alle Beobachtungsdaten im Bereiche $J(J+1) \approx 500$, also hoher Rotation liegen. Tabelle 4, Kolonne 6 enthält deshalb für $B^*_{\beta 13}$ den Wert 0,967 cm $^{-1}$; der Termwert in Kolonne 2 ist durch Extrapolation berechnet.

Tabelle 4 (cm^{-1})

1	2	3	4	5	6	7	8
$B^2\Pi v$	T^*_v	ε_β	T_v	$\Delta G(v)$	B^*_β	ΔB_β	B_β
0	45500	+ 5	45505	1023			1,118
1	46522	+ 6	46528	1009			1,105
2	47531	+ 6	47537	996			1,093
3	48526	+ 7	48533	974			1,081
4	49499	+ 8	49507	973			1,068
5	50471	+ 9	50480	955			1,056
6	51425	+ 10	51435	943	1,041	− 0,001	1,040
7	52366	+ 12	52378	933	1,034	− 0,002	1,032
8	53295	+ 16	53311	915	1,022	− 0,003	1,019
9	54203	+ 23	54226	906	1,019	− 0,012	1,007
10	55107	+ 25	55132	886	1,005	− 0,007	0,998
11	55984	+ 34	56018	881	1,009	− 0,023	0,986
12	56878	+ 21	56899	861	0,981	− 0,010	0,971
13	57772	− 12	57760	837	0,967	− 0,013	0,954
14	58564	+ 33	58597	854	1,035	− 0,085	0,950
15	59467	− 16	59451	830	0,951	− 0,010	0,941
16	60341	− 60	60281	788	0,997	− 0,055	0,942
17	61103	− 34	61069	778	—	− 0,026	
18	61874	− 27	61847	753	0,91	− 0,008	0,90
19	62623	− 23	62600		0,91	− 0,007	0,90
$C^2\Pi v$		ε_δ			B^*_δ	ΔB_δ	B_δ
0	52372	− 8	52380	2362	1,981	+ 0,001	1,982
1	54697	− 45	54742	2366	1,948	+ 0,018	1,966
2	56958	− 150	57108	2270	1,806	+ 0,129	1,935
3	59420	+ 42	59378	2299	1,699	+ 0,176	1,875
4	61741	+ 64	61677		1,86	+ 0,022	1,88

Entstörung (2. Näherung)

§ 7. Im vorhergehenden § ist die homogene Störung zwischen den $B^2\Pi$- und $C^2\Pi$-Termen im Sinne einer ersten Näherung so behandelt worden, wie wenn eine Wechselwirkung paarweise nur zwischen Termen koinzidierender Schwingungsniveaus stattfände. In zweiter Näherung soll nun auch die Wechselwirkung zwischen entfernteren Niveaus berücksichtigt werden. Auswirkungen dieser Art zeigten sich bereits in dem

Umstande, dass die Differenzen $B^*_\delta - B^*_\beta$ für die in § 5 und 6 behandelten Paare zu kleine Werte ergaben, und dass die Vibrationsstörungen nicht quantitativ durch die erste Näherung erklärt werden konnten. Die nicht mit δ-Banden koinzidierenden β-Banden scheinen zwar, wie Figur 2 zeigt, ungestört zu sein, da sie konstante B-Werte, das heisst horizontale B-Geraden ergeben. Die Grösse der B-Werte, die man so erhält, sind – in Kolonne 6 der Tabelle 4 als B^*_β bezeichnet – in der Figur 17 als Kreuze eingetragen. Sie sind merklich zu gross, vor allem $B^*_\beta(v = 14)$ und $B^*_\beta(v = 16)$, die zu den im Gebiet maximaler Störung liegenden Termen gehören. Soll eine vollständige «Entstörung» durchgeführt werden, das heisst sollen Werte ermittelt werden, die als Konstanten der ungestörten $B^2\Pi$- und $C^2\Pi$-Terme gelten können, so ist in einer zweiten Näherung auch den entfernteren Wechselwirkungen Rechnung zu tragen.

Schreibt man die Formeln (8) und (9) nun in der Form

$$\varepsilon_{ik} = \frac{C_{ik}}{2}\left\{\sqrt{1+\frac{4H_{ik}^2}{C_{ik}^2}} - 1\right\} \quad \left(= \frac{H_{ik}^2}{C_{ik}}, \quad \text{wenn} \quad 2H_{ik} \ll C_{ik}\right) \tag{10}$$

$$\Delta B_{ik} = \frac{B_{\delta i} - B_{\beta k}}{2}\left\{1 - \frac{1}{\sqrt{1+4H_{ik}^2/C_{ik}^2}}\right\} \quad \left(= (B_{\delta_i} - B_{\beta_k})\,\frac{H_{ik}^2}{C_{ik}^2}\right) \tag{11}$$

worin

$$C_{ik} = W_{\delta_i}(0) - W_{\beta_k}(0)\,,$$

so geben

$$\varepsilon_{\delta i} = \sum_k{}' \varepsilon_{ik} \qquad \varepsilon_{\beta_k} = \sum_i{}' \varepsilon_{ik} \tag{12}$$

die Grösse der Vibrationsstörungen der $\delta(v=i)$- bzw. $\beta(v=k)$-Terme durch die entfernteren Terme. Ferner sind

$$\Delta B_{\delta_i} = -\sum_k{}' \Delta B_{ik} \qquad \Delta B_{\beta_k} = +\sum_i{}' \Delta B_{ik} \tag{13}$$

die an den zugehörigen Rotationskonstanten B^* anzubringenden entsprechenden Korrekturen. Die Apostrophe an den Summenzeichen sollen andeuten, dass bei der Summation die in § 6 bereits berücksichtigten koinzidierenden Terme wegzulassen sind. Durch Addition der ε_{β_k}-Korrekturen zu den T^*_v $(v = k)$ und durch Subtraktion der ε_{δ_i} von den T^*_v $(v = i)$ der Tabelle 4, Kolonne 2 erhält man die in zweiter Näherung entstörten T_v-Werte der Kolonne 4. Figur 10c zeigt, dass die entstörten $\Delta G(v)$ (Kolonne 5) eine fast völlig glatte $\Delta G(v)$-Kurve liefern. Durch Addition der ΔB-Korrekturen (Formeln 13) zu den B^* der Kolonne 6 entstehen die entstörten B-Werte der Kolonne 8, die in Figur 17 nun auch nahezu glatt verlaufende $B(v)$-Kurven für beide $^2\Pi$-Terme ergeben.

Bei der Berechnung der ε_{ik} nach Formel (10) und der ΔB_{ik} nach Formel (11) ist für H_{ik} der H-Wert (Fig. 16) bei der Energie $T = T_{ik} - F_s$

benutzt worden, wobei T_{ik} die Energie des meist weit extrapolierten Schnittpunktes der $W_{\delta i}$ und $W_{\beta k}$-Kurven bei $J = J_s$ ist, und $F_s - B_s J_s(J_s+1) = h/8\pi^2 c\, 1/\mu r^2_s J_s(J_s+1)$ eine berechnete Rotationsenergie in diesem Schnittpunkt ist. Der Kernabstand im Schnittpunkt ergab sich mit Hilfe plausibler Potentialkurven zu $r_s = 1{,}178$ Å, womit man für B_s den Wert 1,63 cm^{-1} berechnet. Diese Wahl von H_{ik} ist zwar nicht streng begründbar, sie ist jedoch dem hier verwendeten Entstörungsverfahren angemessen, das ohnehin für die hohen β- und δ-Schwingungsniveaus extrapolierte Werte benützen muss.

Den Figuren 10*c* und 17 entnimmt man als Konstanten des entstörten

$C\,^2\Pi$-Term: $\omega_e = 2395\ cm^{-1}$ $\omega x = 15\ cm^{-1}$

$B_e = 2{,}002\ cm^{-1}$ $\alpha = 0{,}030\ cm^{-1}$

Die Genauigkeit dieser Zahlen ist natürlich entsprechend ihrer Herleitung beschränkt.

Die Δ1-Aufspaltung des $C^2\Pi$-Terms (Fig. 9) zeigt im Bereich der Störung die Vermischung mit dem $B^2\Pi$-Term in Form einer Abnahme bis auf die Hälfte des Wertes, der sich nach der für den ungestörten Bereich gut erfüllten Formel $\Delta\nu_{cd} = qK(K+1)$ ergäbe, wobei die andere Hälfte im störenden $B^2\Pi$-Term erscheint. Die Grösse von q ist 0,016 cm^{-1}. Nach der im «pure precession»-Fall gültigen Formel

$$q = \frac{2\,B^2\,l\,(l+1)}{\nu\,(\Pi\Sigma)}$$

erhält man für $l = 1$ als Abstand des die Aufspaltung verursachenden $^2\Sigma$-Terms $\nu(\Pi\Sigma) = 1000\ cm^{-1}$, also auffallend genau die Differenz zwischen den $D^2\Sigma^+$- und $C^2\Pi$-Termen.

Für den $C^2\Pi$-Term gilt exakt HUNDS Fall *b*, es ist also $A = Y = 0$. Zufolge der Wechselwirkung mit $B^2\Pi$, für den $Y = 30$ ist, treten aber im Bereich der Störung erhebliche Abweichungen von den gewöhnlichen Termformeln auf. Wiederum beobachtet man als Folge der Vermischung eine 1:1-Aufteilung der Dublettaufspaltung nahe dem Ort maximaler Störung, im Bandenpaar $\beta(3,0) + \delta(15,0)$ für $J(J+1) = 90$.

IV. Diskussion

§ 8. Die in den §§ 5 bis 7 durchgeführte Analyse und Entstörung der δ- und β-Banden des NO-Moleküls ist wohl das erste, quantitativ behandelte Beispiel einer homogenen Störung zwischen zwei Molekültermen. Es zeigt anschaulich das vollständige System der Energiezustände im Gebiet der Überschneidung zweier Potentialkurven gleicher Rasse. Vor allem lieferte die vorliegende Untersuchung die in Figur 16 wieder-

gegebene Kurve $H = H(T)$ für die Grösse des Störungsparameters als Funktion der Anregungsenergie des Moleküls, wofür bisher kein Beispiel vorlag. Der grösste gemessene Wert von H ist 220 cm^{-1}, also wesentlich kleiner als die Schwingungsstufen ΔG der beiden sich störenden Terme, so dass in der Frage des Verlaufs der Potentialkurven am Schnittpunkt die Näherung des Überschneidens hier den Verhältnissen besser angepasst ist als die Näherung des Ausweichens (vgl. HERZBERG[19]) p. 297). Tatsächlich sind ja auch oberhalb des Schnittpunktes noch das $C^2\Pi$ ($v = 4$) und mehrere $B^2\Pi$ ($v = 16$ bis 19)-Niveaus sichergestellt, und sind noch höhere β-Niveaus wahrscheinlich vorhanden[13]). Höhere δ-Banden scheinen durch eine neue Störung beeinflusst zu werden und können vorläufig nicht mit Sicherheit identifiziert werden.

Das in der Literatur beschriebene, bestuntersuchte Beispiel einer homogenen Störung ist die Wechselwirkung zweier angeregter $^1\Sigma$-Terme im AgH-Molekül (GERÖ und SCHMID[20]). Hier ist allerdings die Störung grösser, so dass nur vom *einen* Bandensystem $^1\Sigma^a - X^1\Sigma$ nahezu ungestörte Teile beobachtet werden können, das andere «störende» System $^1\Sigma^b - X^1\Sigma$ sich jedoch nur in der Störung der ersten bemerkbar macht. Die paarweise Wechselwirkung koinzidierender Zustände ist deshalb in diesem Beispiel lange nicht so ausgeprägt wie im Falle des NO-Moleküls. Immerhin können, wenigstens formal, aus den von GERÖ und SCHMID publizierten Figuren 1 bis 4 für die ersten 4 Schwingungsniveaus des $^1\Sigma^a$-Terms wie folgt H-Werte berechnet werden, wenn als Störungspartner das Niveau $v = 0$ des $^1\Sigma^b$-Terms allein angenommen wird: Aus den Gleichungen (1) und (2) des § 5 leitet man leicht ab

$$\eta = \frac{d^2 W_a'}{d\,[J(J+1)]^2} = -\frac{(B_a - B_b)^2}{4H} \qquad (14)$$

für die Steigung η der Wendetangente der $(B' - B'')$-Kurven. Diese Kurven stellen ja $dW_a'/d[J(J+1)]$ dar und haben den Wendepunkt bei $W_a = W_b$. Man erhält so mit den Werten $B_a = 6{,}1$ cm^{-1} und $B_b = 3{,}3$ cm^{-1}

$^1\Sigma^a$ v'	η cm^{-1}	H cm^{-1}
0	− 0,0061	320
1	− 0,0023	860
2	− 0,00125	1600
3	− 0,00084	2300

Sicherlich hat im Falle des AgH dieses so berechnete H nicht die strenge Bedeutung des Wechselwirkungsparameters der Gleichungen (2). Es ist aber schon der kleinste Wert $H = 320$ cm^{-1} für $v' = 0$ im Verhältnis zu den Abständen der Schwingungsniveaus fast so gross wie der Maximalwert im NO-Molekül.

Nach Gleichung (14) kann auch für die von GERÖ[21]) untersuchte homogene Störung zwischen zwei $^2\Sigma$-Termen des PbH-Moleküls aus GERÖs Figur 3 ein H-Wert bestimmt werden. Er ergibt sich zu 150 cm^{-1}. Da hier die B-Werte der beiden sich störenden Terme nur wenig voneinander verschieden sind und zudem das Molekül in den beiden Zuständen nur locker gebunden ist, bedeutet dieser relativ kleine Wert auch hier eine grosse Störung.

Figur 18 gibt ein Bild der Potentialkurven der angeregten NO-Zustände und der Lage einiger Schwingungsniveaus. Am Ort der homogenen Störung sind die Kurven als Ausdruck reduzierter Bedeutung gestrichelt gezeichnet. Die Dissoziationsgrenze des $X^2\Pi$-Grundzustandes

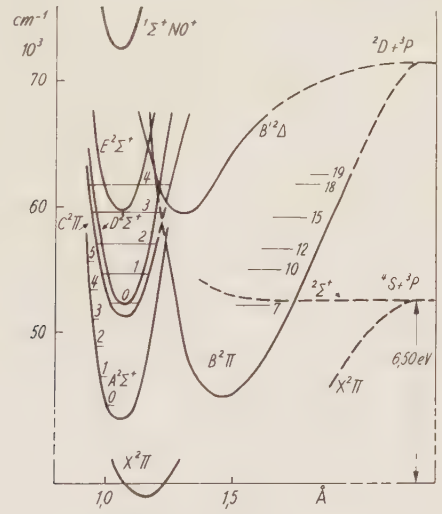


Fig. 18

Potentialkurven des NO-Moleküls.

ist bei $\boldsymbol{D}_0(0) = 6{,}50$ eV gezeichnet. Wie schon früher hiezu bemerkt[9]), würde das Niveau $v = 19$ des $B^2\Pi$-Zustandes, das bei 62600 cm^{-1} liegt, die für den $B^2\Pi$-Term allein in Frage kommende Dissoziationsgrenze $N(^2D) + O(^3P)$ überschreiten, falls man den bis vor kurzem öfters diskutierten kleinen Wert $\boldsymbol{D}_0(0) = 5{,}3$ eV zugrunde legte. Die Ergebnisse dieser Arbeit schliessen also diesen Wert aus. Der von der Dissoziationsgrenze unangeregter Atome $N(^4S) + O(^3P)$ ausgehende repulsive $^2\Sigma^+$-Term erklärt [GLOCKLER[22]), TANAKA[23])] das Fehlen von β-Banden für $v > 7$ im Emissionsspektrum. Das Fehlen der δ-Banden für $v > 0$ in Emission folgt dann aus der in dieser Arbeit diskutierten $\delta - \beta$ Wechselwirkung. Durch die Tatsache, dass γ-Banden bis $v' = 5$ gefunden werden konnten[9])[13]), er-

Tabelle 5 β (11,0)

J-½	$N^{15}O$ R_{11}	$N^{15}O$ P_{11}	NO^{18} R_{11}	NO^{18} P_{11}
0	55801,5		55724,8	
1	01,5	793,8	24,8	717,4
2	00,2	88,7	23,6	12,3
3	797,5	82,2	20,7	05,9
4	93,4	74,4	16,8	698,2
5	88,1	65,2	11,6	89,1
6	81,2	54,7	04,9	78,7
7	73,3	42,8	697,1	67,0
8	63,8			
9	53,1			

β (12,0)

$N^{15}O$ R_{11}	$N^{15}O$ P_{11}
56595,6	
95,6	
95,6	582,3
94,2	76,5
91,9	69,7
88,2	61,7
82,3	52,9
72,4	43,0
	30,7
	13,9

β (14,0)

$N^{15}O$ R_{11}	$N^{15}O$ P_{11}	NO^{18} R_{11}	NO^{18} P_{11}
58343,8		58249,9	
43,8	336,0	49,9	242,4
42,6	30,9	48,7	37,3
40,0	24,4	46,2	30,9
36,0	16,9	42,4	23,4
30,9	07,9	37,3	14,5
24,4	297,5	30,9	04,5
16,9	85,9	23,4	193,1
07,9	73,0	14,5	80,7
	59,2		

Tabelle 5 β (15,0)

J-½	$N^{15}O$ R_{11}	$N^{15}O$ P_{11}	$N^{15}O$ Q_{11}	$N^{15}O$ R_{22}	$N^{15}O$ P_{22}	NO^{18} R_{11}	NO^{18} P_{11}	NO^{18} Q_{11}
0	59459,6		455,6			59371,2		367,5
1	61,2	450,8	54,7	376,5		72,7	362,9	66,7
2	61,8	46,7	53,2	77,6		73,8	58,7	
3	61,8	41,8	50,3	77,6	356,6	73,8	53,7	
4	61,2	36,0		77,6	50,9	73,8	48,3	
5	60,2	29,7		76,5	44,8	72,7	42,2	
6	58,5	22,7			37,8	71,2	35,5	
7	56,2	15,0			30,1	69,1	28,2	
8	53,5	06,8					20,3	
9		398,1					12,1	
10		88,9						

Tabelle 5 δ (1,0)

J-½	NO^{18} R_{12}	NO^{18} P_{12}
1	54505,5	
2	08,2	490,4
3	11,5	86,0
4	15,0	82,2
5		78,8
6		75,8
7		73,7

Tabelle 5 δ (2,0)

J-½	$N^{15}O$ cc R_{22} dd	$N^{15}O$ cc P_{22} dd	NO^{18} cc R_{11} dd	NO^{18} cc P_{11} dd	NO^{18} cc R_{22} dd	NO^{18} cc P_{22} dd
0			56888,0			
1	56847,0		90,4	56879,0	56788,1	
2	50,4	56830,5	92,6	75,3	91,8	
3	53,9	27,2	94,5	71,4	95,4	56768,6
4	57,0	23,9	96,8	67,3	99,2	65,7
5	860,7 860,1	20,6	98,2	62,8	803,2 802,7	62,9
6	64,2 63,4	817,7 817,3	900,1 899,6	58,4	07,1 06,4	760,2 759,5
7		14,4 13,9	01,9 901,6	53,9	10,5 09,8	57,1
8			03,9	849,5 849,1		
9			06,7 05,8	45,0 44,5		
10				40,8 39,7		

Tabelle 5 δ (3,0)

J-½	$N^{15}O$ R_{11}	$N^{15}O$ P_{11}	$N^{15}O$ Q_{11}	$N^{15}O$ R_{22}	$N^{15}O$ P_{22}	$N^{15}O$ Q_{22}	NO^{18} R_{11}	NO^{18} P_{11}	NO^{18} Q_{11}
0	59024,4		021,0				935,3		931,9
1	25,8	016,3	20,0	940,6		934,2	36,0	927,1	30,4
2	26,2	11,7		42,0	925,7	32,4	36,6	22,6	
3	25,8	06,5		42,0	20,7	30,4	36,0	17,2	
4	24,4	00,3		41,3	15,3		34,4	11,2	
5	22,2	993,4		40,0	08,7		31,9	04,1	
6	19,0	85,6		38,0	01,6		28,7	896,3	
7	14,7	76,9			893,7		24,2	87,5	
8	09,6	67,3			84,8		18,9	77,9	
9	03,7	56,7					12,4	67,0	
10	58996,1	45,1							

Tabelle 5 δ (4,0)

J-½	$N^{15}O$ R_{11}	$N^{15}O$ P_{11}	$N^{15}O$ Q_{11}	$N^{15}O$ R_{22}	$N^{15}O$ P_{22}	$N^{15}O$ Q_{22}	NO^{18} R_{11}	NO^{18} R_{11}
0	61532,3		528,6				429,2	
1	34,2	523,7	27,1	440,4		432,2	30,9	420,9
2	35,4	19,5	26,3	43,1	424,0	32,2	30,9	16,6
3	35,4	14,7		45,8	20,9	30,9	30,9	11,5
4	35,4	09,5		47,7	16,6	30,9	29,2	05,7
5	33,7	03,3		48,9	12,6	29,2	26,4	398,9
6	31,0	496,5		48,9	07,7	27,6	22,7	90,8
7	27,1	88,3		48,9	02,7	24,0	17,4	82,0
8	21,3	79,3			396,2			71,7
9		68,9			88,7			60,3
10		56,9						47,3

übrigt sich die etwas gekünstelt erscheinende Glocklersche Annahme über den Verlauf des repulsiven $^2\Sigma^+$-Terms. An keiner Absorptionsbande des NO-Moleküls wird eine Verbreiterung der Linien oder ein Abbrechen der Bandenzweige beobachtet; die Prädissoziation in das $^2\Sigma^+$-Kontinuum muss demzufolge schwach sein.

V. Isotopen-Banden

§ 9. Wie schon in § 3 erwähnt, lassen sich auf den Platten auch Banden der Isotopen-Moleküle $N^{15}O$ und NO^{18} beobachten und zwar gerade die starken Banden im Gebiete maximaler Störung. Die Isotopie-Verschiebungen sind im Bereich der Störung völlig anomal, weshalb es von Interesse ist, darauf näher einzugehen. Die vermessenen Rotationslinien sind in der Tabelle 5 enthalten. Man berechnet daraus für den Grundzustand $X^2\Pi$ die B-Werte der Tabelle 6, die mit früheren Bestimmungen[17] [24]), soweit solche vorliegen, und mit theoretischen Werten ausgezeichnet übereinstimmen.

Tabelle 6

B-Werte des Grundzustandes $X^2\Pi$ ($v'' = 0$) cm^{-1}

	B_{eff}		[17])	[24])	B_0''	theoret.
$N^{14}O^{16}$					1,6957	
$N^{15}O^{16}$	$^2\Pi_{1/2}$	1,614	1,6137	1,6146	1,636	1,6358
	$^2\Pi_{3/2}$	1,657	1,6575	1,6577		
$N^{14}O^{18}$	$^2\Pi_{1/2}$	1,588	—	—	1,608	1,6077
	$^2\Pi_{3/2}$	1,627	—	—		

Hinsichtlich der angeregten Zustände liegen vollständige Ergebnisse für die Niveaus $\delta(v = 3)$ und $\beta(v = 15)$ des Moleküls $N^{15}O$ vor. Für den Störungsparameter H^i dieses Termpaars erhält man aus den Isotopenbanden nach der in § 5 beschriebenen Methode auf $\pm$ 1 cm^{-1} genau denselben Wert wie beim Hauptisotop. Der Abstand der in erster Näherung entstörten Niveaus $C^i - T_\delta^i - T_\beta^i = +10$ cm^{-1} lässt sich wegen der Kürze der Isotopenbanden nur auf etwa $\pm$ 5 cm^{-1} genau bestimmen, ist aber eindeutig grösser als für $N^{14}O$ ($C = -48$ cm^{-1}) und erreicht einen positiven Wert*). Die positive Differenz $C^i - C = \Delta^i w_\beta^* - \Delta^i w_\delta^* = +58$ cm^{-1}

*) Im Sinne der in § 5 vereinbarten Bezeichnungsweise müsste deshalb eigentlich die Benennung der Banden $\delta(3,0)$ und $\beta(15,0)$ der Isotopenmoleküle vertauscht werden. Hievon wird jedoch abgesehen, damit einander entsprechende Terme in allen Molekülen gleich benannt bleiben.

zeigt erwartungsgemäss, dass die Vibrationsisotopie-Verschiebung $\Delta^i w_\beta^* = w_\beta^* - w_\beta^{*i}$ des $\beta(v = 15)$-Terms grösser ist als $\Delta^i w_\delta^*$ des $\delta(v - 3)$-Terms. Figur 19 gibt die Isotopie-Verschiebungen $\Delta^i W' = W' - W'^i$ für die beiden Niveaus. Sie sind aus den Bandenlinien berechnet unter Berücksichtigung der Isotopie-Verschiebungen im Grundzustand. Figur 19a zeigt den Isotopieeffekt für die Dublettkomponenten der Terme einzeln, Figur 19b für deren Mittelwerte. Diese Isotopie-Verschiebungen werden einander exakt gleich beim Abszissenwert $J_0(J_0 + 1) = 53$, also $J_0 = 7^1/_2$,

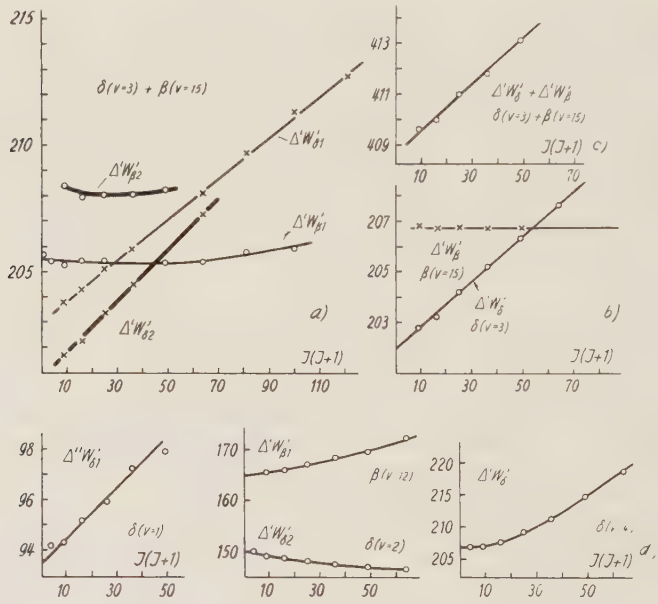


Fig. 19

Beobachtete Isotopieaufspaltungen der Terme

welches nach Tabelle 3 auch der J-Wert maximaler Störung, das heisst der Schnittpunkt der entstörten Terme $W_\delta(J_0) = W_\beta(J_0)$ ist. In Figur 19c ist die Summe $\Delta^i W_\delta' + \Delta^i W_\beta'$ gegen $J(J + 1)$ aufgetragen. Die entstehende Gerade hat die Steigung $(B_\delta^* + B_\beta^*) - (B_\delta^{*i} + B_\beta^{*i}) = 0{,}089\ \mathrm{cm}^{-1}$. Nach Tabelle 3 ist $B_\delta^* + B_\beta^* = 2{,}650\ \mathrm{cm}^{-1}$, so dass man erhält: $B_\delta^{*i} + B_\beta^{*i} = 2{,}561\ \mathrm{cm}^{-1}$. Dies stimmt völlig mit dem für den unstarren Rotator in üblicher Weise berechneten Wert überein ($\varrho^2 = 0{,}9646$, $\alpha_\delta = 0{,}030\ \mathrm{cm}^{-1}$, $v = 3$; $\alpha_\beta = 0{,}012\ \mathrm{cm}^{-1}$, $v = 15$).

Nach Figur 19b ist die Steigung der Kurven des *Rotations*-Isotopie-Effektes

$$S_\delta = \frac{d\,\Delta^i W_\delta'}{d\,J(J+1)} = 0{,}089\ \mathrm{cm}^{-1}, \qquad S_\beta = \frac{d\,\Delta^i W_\beta'}{d\,J(J+1)} = 0{,}000\ \mathrm{cm}^{-1}$$

für δ- und β-Term ganz verschieden gross. Aus den Formeln (1) und (2) des § 5 erhält man leicht für $2\,\mathrm{H} \gg W_\delta - W_\beta$:

$$\Delta^i W'_{\substack{\beta \\ \delta}} = \text{const.} + {}^1/_2 \Big\{ (1-\varrho^2)\,(B^*_\delta + B^*_\beta)\,J(J+1) \pm \frac{1}{4\,H}\Big[2\,(C-\varrho^2\,C^i) \cdot (B^*_\delta - B^*_\beta)\,J(J+1) + (1-\varrho^4)\,(B^*_\delta - B^*_\beta)^2\,J^2(J+1)^2\Big]\Big\}, \quad (15)$$

worin const. die Vibrations-Isotopie-Verschiebung enthält. Aus (15) folgt:

$$S_{\substack{\beta \\ \delta}} = (1-\varrho^2)\,\frac{B^*_\delta + B^*_\beta}{2} \pm \frac{C-\varrho^2\,C^i}{4\,H}\,(B^*_\delta - B^*_\beta) \pm (1-\varrho^4)\,\frac{(B^*_\delta - B^*_\beta)^2}{4\,H} \times J(J+1)\,. \quad (16)$$

Mit den Zahlenwerten $1 - \varrho^2 = 0{,}0354$, $\mathrm{H} = 219\ \mathrm{cm^{-1}}$, $B^*_\delta + B^*_\beta = 2{,}650\ \mathrm{cm^{-1}}$, $B^*_\delta - B^*_\beta = 0{,}748\ \mathrm{cm^{-1}}$ wird im J-Bereich, für den Beobachtungen vorliegen, der dritte Term in (16) klein gegen den ersten, S_β und S_δ werden also nahezu konstant. Setzt man $J(J+1) = 40$, wie es etwa der Mitte des beobachteten J-Bereiches entspricht, so erhält man aus (16) zahlenmässig:

$$\begin{aligned} S_\beta &= 0{,}049 + (C - \varrho^2\,C^i)\ 0{,}00085 = 0{,}000\ \mathrm{cm^{-1}} \quad \text{(a)} \\ S_\delta &= 0{,}045 - (C - \varrho^2\,C^i)\ 0{,}00085 = 0{,}089\ \mathrm{cm^{-1}} \quad \text{(b)} \end{aligned} \quad (17)$$

Aus (17)a folgt $C - \varrho^2 C^i = -57\ \mathrm{cm^{-1}}$, aus (17)b für dieselbe Grösse $-52\ \mathrm{cm^{-1}}$. Setzt man den Mittelwert $C - \varrho^2 C^i = -54{,}5\ \mathrm{cm^{-1}}$, so folgt mit $C = -48\ \mathrm{cm^{-1}}$: $C^i = +7\ \mathrm{cm^{-1}}$ in Übereinstimmung mit dem direkt bestimmten Wert. Figur 20 soll schematisch den Rotations-Isotopie-Effekt veranschaulichen und soll zeigen, wie seine Verteilung auf δ- und β-Term durch die Grössen C und C^i entscheidend bestimmt wird. Die Figur ist nicht maßstäblich für $\delta(v=3) + \beta(v=15)$ gezeichnet, um sie klarer zu gestalten. C und C^i sind beim fraglichen Termpaar klein gegen $2\,\mathrm{H}$.

Einige der aus den übrigen Isotopen-Banden der Tabelle 5 berechneten Isotopie-Verschiebungen im δ- und β-Termsystem sind in Figur 19d graphisch dargestellt. Da in allen diesen Fällen das Beobachtungsmaterial unvollständig ist, sollen sie nicht quantitativ behandelt werden. Für $\delta(v=1)$ ist $\Delta^{ii} W'_{\delta 1}$ (Isotop NO^{18}) beobachtet für $J(J+1) < 50$, in welchem Gebiet $H \ll |W_\delta - W_\beta|$ ist, die Störung sich also noch nicht bemerkbar macht. Dementsprechend stimmt der gemessene Effekt mit dem in einfacher Weise theoretisch berechneten Wert überein. Dasselbe gilt für $\beta(v = 11$ und $14)$. $\delta(v=2) + \beta(v=12)$ zeigen qualitativ den Verlauf entsprechend dem in Figur 20 gekennzeichneten J-Bereich oberhalb der Kreuzungsstelle. Für $\delta(v=4)$ fällt der gemessene Bereich unterhalb die-

sen Punkt und somit wächst die Isotopie-Verschiebung mit J gegen den grösseren Effekt im β-System hin.

Tabelle 7

Vibrations-Isotopie-Effekt (cm^{-1})

	$N^{15}O$			NO^{18}	
δ-Terme $C\,^2\Pi$					
v	$\Delta^i w_\delta'$ obs.	$\Delta^i w_\delta^{(c)}$ calc.	$\Delta^i w_\delta^*$	$\Delta^{ii} w_\delta'$ obs.	$\Delta^{ii} w_\delta^{(c)}$ calc.
1	64*	62		94	90
2	150	102		212	152
3	202	140	176	302	205
4	207	183		320	269
β-Terme $B\,^2\Pi$					
v	$\Delta^i w_\beta'$	$\Delta^i w_\beta^{(c)}$	$\Delta^i w_\beta^*$	$\Delta^{ii} w_\beta'$	$\Delta^{ii} w_\beta^{(c)}$
11	179	179		263	263
12	165	189		246*	279
14	215	214		317	315
15	207	230	233	302	338
16	239*	237		—	350

Tabelle 7 ist eine Zusammenstellung der *Vibrations*-Isotopie-Verschiebungen der δ- und β-Terme. Es sind Mittelwerte für die Dublettkomponenten, die unter sich um einige cm^{-1} differieren können. Einzelne durch * gekennzeichnete Messwerte stammen aus Isotopenbanden, in denen nur der Beginn der Zweige erkannt werden kann, eine Rotationsanalyse jedoch nicht möglich ist. Die Tabelle enthält auch berechnete Verschiebungen $\Delta^i w^{(c)}$ nach der Formel

$$\Delta^i w^{(c)} = (1 - \varrho)\left[G^*(v) - x\,\omega(v + {}^1/_2)\right]. \qquad (18)$$

Beobachtete und berechnete Werte stimmen gut überein für $\delta(v = 1)$, $\beta(v = 11, 14$ und $16)$, nicht aber für die stark gestörten Paare $\delta(v = 2) + \beta(v = 12)$ und $\delta(v = 3) + \beta(v = 15)$, wo die beobachtete Verschiebung für die δ-Niveaus zu gross und für die β-Niveaus zu klein ist. Nach Gleichung (2) des § 5 sollte, unabhängig davon, ob $H = H^i$ und für jedes J gelten:

$$\Delta^i W_\delta' + \Delta^i W_\beta' = \Delta^i W_\delta + \Delta^i W_\beta \qquad (19)$$

das heisst die Summe der Isotopie-Verschiebungen der gestörten Terme sollte gleich sein der Summe der Verschiebungen der ungestörten. Die nach der Gleichung (18) berechneten Werte $\Delta^i w^{(c)}$ erfüllen diese Bedingung nicht. $\Delta^i w_\delta' + \Delta^i w_\beta'$ ist für beide Paare grösser als $\Delta^i w_\delta^{(c)} + \Delta^i w_\beta^{(c)}$.

Wie Figur 20 zeigen soll, können «in 1. Näherung entstörte» Vibrations-Isotopie-Verschiebungen $\Delta^i w^*$ nach den folgenden Beziehungen berechnet werden:

$$\begin{aligned} \Delta^i w^*_\delta &= {}^1/_2\,[\Delta^i w'_\delta + \Delta^i w'_\beta - (C^i - C)] \\ \Delta^i w^*_\beta &= {}^1/_2\,[\Delta^i w'_\delta + \Delta^i w'_\beta + (C^i - C)] \end{aligned} \tag{20}$$

Mit $C = -48$ und $C^i = +9$ cm^{-1} erhält man hieraus für $\delta(v = 3)$ und $\beta(v = 15)$

$$\Delta^i w^*_\delta = 176 \text{ cm}^{-1} \qquad \Delta^i w^*_\beta = 233 \text{ cm}^{-1}$$

das heisst nahezu Übereinstimmung mit $\Delta^i w_\beta^{(c)}$, nicht aber mit $\Delta^i w_\delta^{(c)}$. Eine in 2. Näherung weitergeführte Entstörung, also die Berücksichtigung

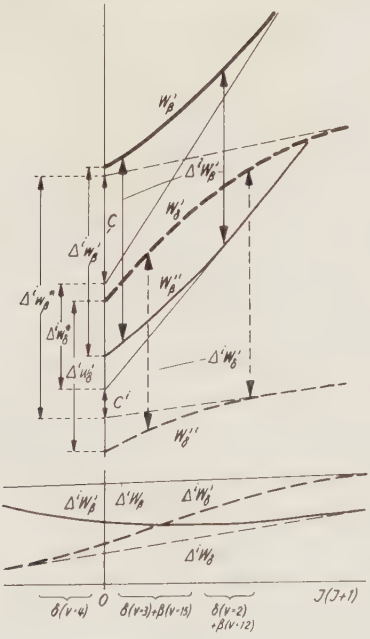


Fig. 20.

Rotations- ($\Delta^i W'$) und Vibrations-($\Delta^i w'$)-Isotopieaufspaltungen der gestörten β-Terme (W_β' und $W_\beta'^i$, ausgezogene Termkurven) und der gestörten δ-Terme (W_δ' und $W_\delta'^i$, gestrichelte Termkurven).

der störenden Einwirkung entfernterer Niveaus analog den Überlegungen in § 7 hätte [Gleichungen (10) und (12)], da alle $C'_{ik} > C_{ik}$ sind, zur Folge, dass alle ε^i_δ und ε^i_β für die Isotopen kleiner würden als die entsprechenden ε_δ und ε_β für das Hauptmolekül. Sie würde also die $\Delta^i w^*_\delta$ um $\varepsilon_\delta - \varepsilon^i_\delta$ weiter verkleinern, die $\Delta^i w^*_\beta$ um $\varepsilon_\beta - \varepsilon^i_\beta$ vergrössern. Man sieht leicht ein, dass dabei die letztere Differenz $\varepsilon_\beta - \varepsilon^i_\beta$ wesentlich kleiner wird

als $\varepsilon_\delta - \varepsilon_\delta^i$, da die δ-Niveaus in ein und derselben Entfernung von doppelt so vielen β-Niveaus beeinflusst werden als umgekehrt. Eine Abschätzung zeigt, dass $\varepsilon_\beta - \varepsilon_\beta^i \approx 0$ ist.

Herrn Dr. G. Herzberg sowie auch Herrn J. Shoosmith in Ottawa danken wir für die entscheidend wichtige Hilfe bei der Aufnahme der Spektren. Unser Dank gebührt auch Herrn Dr. P. G. Wilkinson in Chicago für die freundliche Überlassung einer Platte, die einzelne unserer Analysen in wertvollster Weise zu erweitern gestattete, sowie Herrn Prof. M. Fierz für nützliche Diskussionen. Wir danken auch dem Schweizerischen Nationalfonds für wissenschaftliche Forschung, der dem einen von uns (A. L.) einen Gastaufenthalt in Basel ermöglicht hat.

Basel und Stockholm. Physikalische Institute der Universitäten.

Literatur

[1]) S. W. Leifson, Astrophys. J., *63*, 73 (1926).
[2]) H. Sponer und J. J. Hopfield, Phys. Rev. *27*, 640 (1926).
[3]) H. P. Knauss, Phys. Rev. *32*, 417 (1928).
[4]) Y. Tanaka, J. Sci. Res. Inst. Tokyo *43*, 160 (1949).
[5]) L. H. Sutcliffe und A. D. Walsh, Proc. Phys. Soc. London A *66*, 209 (1953).
[6]) F. F. Marmo, J. O. S. A. *43*, 1186 (1953).
[7]) F. A. Jenkins, H. A. Barton und R. S. Mulliken, Phys. Rev. *30*, 150 (1927).
[8]) R. Schmid, Z. f. Phys. *64*, 279 (1930).
[9]) G. Herzberg, A. Lagerqvist und E. Miescher, Canad. J. Phys. *34*, 622 (1956).
[10]) M. Ueda, Science of Light (Japan) *3*, 143 (1955).
[11]) P. Brix und G. Herzberg, Canad. J. Phys. *32*, 110 (1954).
[12]) G. Herzberg und T. J. Hugo, Canad. J. Phys. *33*, 757 (1955).
[13]) R. F. Barrow und E. Miescher, Proc. Phys. Soc. London A, *70*, 219 (1957).
[14]) E. Miescher, Helv. Phys. Acta *29*, 401 (1956).
[15]) M. W. Feast, Canad. J. of Res. A. *28*, 488 (1950).
[16]) R. Schmid, Z. f. Phys. *64*, 84 (1930).
[17]) J. J. Gallagher und C. M. Johnson, Phys. Rev. *103*, 1727 (1956).
[18]) R. S. Mulliken, Journ. of Phys. Chem. *41*, 5 (1937).
[19]) G. Herzberg, Spectra of Diatomic Molecules, 1950.
[20]) L. Gerö und R. Schmid, Z. f. Phys. *121*, 459 (1943).
[21]) L. Gerö, Z. f. Phys. *116*, 379 (1940).
[22]) G. Glockler, J. Chem. Phys. *16*, 604 (1948).
[23]) Y. Tanaka, J. Chem. Phys. *22*, 2045 (1954).
[24]) W. H. Fletscher und G. M. Begun, J. Chem. Phys. *27*, 579 (1957).

Ein Beispiel zum Nukleon-Vertex

von **Res Jost,** ETH., Zürich

(6. II. 1958)

Zusammenfassung: Es wird an Hand eines Beispiels gezeigt, dass die lokalen Vertauschungsrelationen und das Massenspektrum zur Herleitung der Dispersionsrelation für den Nukleon-Vertex nicht hinreichen.

§ 1. Einleitung

Analytizitätseigenschaften von Streuamplituden und verwandten Grössen erfreuen sich seit einiger Zeit unter dem Namen «Dispersionsrelationen» (D.R.) einer zunehmenden Beliebtheit. Man kümmert sich dabei weniger um die Herleitung solcher Beziehungen, sondern man diskutiert Streuexperimente unter dem Gesichtspunkt ihrer Gültigkeit. Dabei ist freilich zu beachten, dass die D.R. in den meisten Fällen so schwache Aussagen sind, dass sie durch das Experiment weder bewiesen noch widerlegt werden können. Sie müssen daher durch zusätzliche Betrachtungen über die Matrixelemente selbst ergänzt werden. Diese Probleme sollen aber hier nicht diskutiert werden.

Vielmehr wollen wir uns mit der Frage der Herleitbarkeit der D.R. befassen. Die bekannten gelungenen Herleitungen beruhten auf der mikroskopischen Kausalität der zugrunde gelegten Feldtheorie und der Ausnützung des Massenspektrums[1)2)]. Voll ausgenützt wurden die beiden Voraussetzungen bisher in keinem Fall. Wir werden aber sehen, dass sie für den Beweis der D.R. für den Nukleon-Vertex nicht ausreichen. Eine ähnliche Situation besteht in der Nukleon-Nukleon Vorwärtsstreuung.

Über den Nukleon-Vertex ist das folgende bekannt[2)]: Falls das Verhältnis der π-Masse μ zur Nukleonmasse M grösser als $\sqrt{2} - 1$ wäre, dann gäbe es eine D.R. Wir werden zeigen, dass aus mikroskopischer Kausalität und Massenspektrum eine D.R. nicht folgt, sofern das erwähnte Verhältnis kleiner ist als $2/\sqrt{3} - 1$. Dies ist tatsächlich der Fall. Die angegebene Schranke für das Massenverhältnis ist nicht optimal.

Es lohnt sich vielleicht, die Verhältnisse etwas näher zu beschreiben, soweit das beim unbefriedigenden Stand der Dinge möglich ist. Währenddem die Vertex-Funktion $\Gamma(w)$ für $\mu/M > \sqrt{2}-1$ in einer von $w = (2\mu)^2$ bis ∞ längs der positiven reellen Achse aufgeschnittenen Ebene regulär ist, ist dies bei abnehmendem μ/M nicht mehr notwendigerweise der Fall. Das Regularitätsgebiet wird dann (in einer bisher unbekannten Weise) z. T. durch Kurven begrenzt, die nicht ausschliesslich Stücke der reellen Achse sind. Natürlich kann man immer auf das tatsächlich vorhandene Regularitätsgebiet die Cauchysche Formel anwenden und derart eine verallgemeinerte D.R. herleiten.

Mit allem Nachdruck muss aber festgestellt werden, dass unser Beispiel nur zeigt, dass aus *gewissen Annahmen* die D.R. für den Nukleon-Vertex nicht folgt. Diese Annahmen sind durchaus nicht erschöpfend. Zum Beispiel ist die Unitarität der S-Matrix nicht darunter enthalten. Stellt man sich etwa auf den Standpunkt der Feldtheorie von Lehmann *et al.*[3]), so äussert sich dieser Umstand darin, dass das Gleichungssystem für die r-Funktionen nur zum geringsten Teil ausgenützt worden ist. Es ist durchaus möglich, dass die Benützung dieses Gleichungssystems die Situation radikal ändert.

Welchen Wert man der Tatsache beimessen soll, dass die betrachtete D.R. in jeder Ordnung der Störungsrechnung richtig ist[4]), wird hier nicht entschieden.*)

Unsere Überlegungen werden für 3 skalare Felder $A(x)$, $B(x)$ und $C(x)$ durchgeführt. Dabei sollen $B(x)$ und $C(x)$ Teilchen der Masse M - 1 beschreiben. Sie stehen für das Nukleon-Feld. $A(x)$ steht etwa für das Mesonfeld und beschreibt Teilchen der Masse μ.

§ 2. Die Beziehungen zwischen den Dreipunktfunktionen

In diesem Paragraphen führen wir die verschiedenen Dreipunktfunktionen ein, diskutieren ihre Eigenschaften und leiten die zwischen ihnen bestehenden Relationen ab[3])[5])[6]). Zugrundegelegt werden 3 lokale, skalare Felder $A(x)$, $B(x)$ und $C(x)$.

Definitionen:

$$W_{ABC}(x_0 - x_1, x_1 - x_2) = \langle A(x_0)\, B(x_1)\, C(x_2)\rangle_0 \tag{1}$$

$$G_{ABC}(x_0 - x_1, x_2 - x_2) = \langle [A(x_0)\, B(x_1)]\, C(x_2)\rangle_0 \tag{2}$$

$$\begin{aligned} r_{ABC}(x_0 - x_1, x_0 - x_2) &= \Theta(x_0 - x_1)\, \Theta(x_1 - x_2) \\ G_{ABC}(x_0 - x_1, x_1 - x_2) &+ \Theta(x_0 - x_2)\, \Theta(x_2 - x_1) \\ & G_{ABC}(x_0 - x_2, x_2 - x_1). \end{aligned} \tag{3}$$

*) Siehe Anmerkung bei der Korrektur.

Eigenschaften: Da unter unseren Voraussetzungen die CTP-Invarianz besteht, gelten

$$W_{ABC}(\xi, \eta) = W_{CBA}(\eta, \xi) \tag{4}$$

$$G_{ABC}(-\xi, -\eta) = G_{ABC}(\xi, \eta) \tag{5}$$

Ausserdem folgen aus den Definitionen

$$G_{ABC}(x_0 - x_1, x_1 - x_2) = -G_{BAC}(x_1 - x_0, x_0 - x_2) \tag{6}$$

$$r_{ABC}(x_0 - x_1, x_0 - x_2) = r_{ACB}(x_0 - x_2, x_0 - x_1). \tag{7}$$

Wegen Lorentz-Invarianz und Lokalität sind die eingeführten Funktionen selber Lorentzinvariant und es gelten weiter

$$G_{ABC}(\xi, \eta) = 0 \text{ falls } \xi^2 < 0 \text{ oder } \{\eta^2 < 0 \text{ und } (\xi + \eta)^2 < 0\} \tag{8}$$

$$r_{ABC}(\xi, \eta) = 0 \text{ falls } \xi \notin V_+ \text{ oder } \eta \notin V_+. \tag{9}$$

Aus den üblichen Voraussetzungen über das Spektrum hat man weiter*)

$$\tilde{W}_{ABC}(p, q) = 0 \text{ für } p \notin V_+ \text{ oder } q \notin V_+ \tag{10}$$

$$\tilde{G}_{ABC}(p, q) = 0 \text{ für } q^2 < 0 \text{ oder } \{p^2 < 0 \text{ und } (q - p)^2 < 0\}. \tag{11}$$

(10) und (11) gestatten oft Verfeinerungen. Diese werden sich im folgenden als entscheidend erweisen. Im allgemeinen hat $A(x)$ Matrixelemente zwischen dem Vakuum und den Ein-Teilchen-Zuständen der Masse M_A. Diese sind für uns ohne Interesse, und wir denken sie uns im folgenden durch die Anwendung eines Klein-Gordon-Operators entfernt. Dagegen ist es wichtig, bei welcher Masse das Kontinuum der Mehr-Teilchen-Zustände einsetzt. Dies geschehe bei einer Masse m_A. Dann gelten zu (10) und (11) die Verschärfungen

$$\tilde{W}_{ABC}(p, q) = 0 \text{ für } p^2 < m_A^2 \text{ oder } q^2 < m_C^2 \tag{10'}$$

$$\tilde{G}_{ABC}(p, q) = 0 \text{ für } q^2 < m_C^2 \text{ oder}$$

$$\{p_2 < m_A^2 \text{ und } (q - p)^2 < m_B^2\}. \tag{11'}$$

Schliesslich erfüllt $G_{ABC}(x_0 - x_1, x_1 - x_2)$ die Jacobische Identität. Es gilt

$$G_{ABC}(x_0 - x_1, x_1 - x_2) + G_{BCA}(x_1 - x_2, x_2 - x_0) + G_{CAB}(x_2 - x_0, x_0 - x_1) = 0. \tag{12}$$

*) $\tilde{F}(p, q)$ steht für die Fourier-Transformierte von $F(\xi, \eta)$.

Relationen: Offenbar bestimmen die Wightman-Funktionen W_{ABC} die zwei andern Systeme von Dreipunktfunktionen vollständig. Über sie setzen wir die Eigenschaften, die aus Lorentzinvarianz, Lokalität und Spektrum folgen, voraus. Das nächste Interesse gilt dann der Frage, die Funktionen G_{ABC} so zu charakterisieren, dass es zu ihnen Wightman-Funktionen der vorausgesetzten Art gibt.

Wir behaupten, dass die Eigenschaften (5), (6), (8), (11) und (12) dazu hinreichen. In der Tat, falls wir definieren

$$\begin{aligned}\tilde{W}_{ABC}(p, q) = \Theta(q)\,\Theta(p-q)\,\tilde{G}_{ABC}(p, q)\\ + \Theta(p)\,\Theta(q-p)\,\tilde{G}_{CBA}(q, p)\end{aligned} \tag{13}$$

so ist $W_{ABC}(p, q)$ kraft der Jacobi-Identität

$$\tilde{G}_{ABC}(p, q) + \tilde{G}_{BCA}(q-p, -p) + \tilde{G}_{CAB}(-q, p-q) = 0 \tag{14}$$

und dank (5) und (6) lorentzinvariant. (11) garantiert (10). Ausserdem wird (2) in Wightman-Funktionen ausgeschrieben zu einer Identität. Die Lokalität ist trivial durch (8) ausgedrückt.

Endlich fragen wir uns nach den Eigenschaften, die r_{ABC} haben muss, damit dazu ein G_{ABC} mit den Eigenschaften (5), (6), (8) und (11) gehört.

Wir setzen anfangs lediglich (7) und (9) voraus und definieren

$$\begin{aligned}G_{ABC}(x_0-x_1, x_1-x_2) = r_{ABC}(x_0-x_1, x_0-x_2) + r_{ABC}(x_1-x_0, x_2-x_0)\\ - r_{BAC}(x_1-x_0, x_1-x_2) - r_{BAC}(x_0-x_1, x_2-x_1).\end{aligned} \tag{15}$$

Dadurch werden (5), (6), (8) und (12) erfüllt. (11) wird nach der Substitution von (15) als Bedingung für $r_{ABC}(\xi, \eta)$ aufgefasst. Diese bedeutet, dass

$$\begin{aligned}\tilde{r}_{ABC}(p-q, q) + \tilde{r}_{ABC}(-p+q, -q)\\ - \tilde{r}_{BAC}(-p, q) - \tilde{r}_{BAC}(p, -q) = 0\end{aligned} \tag{16}$$

unter den Vorasussetzungen von (11) und (11′).

Nun ist nach Bargmann, Hall und Wightman[7]) $\tilde{r}_{ABC}(p, q)$ Randwert einer analytischen Funktion der Quadrate p^2, q^2, $(p+q)^2$. Wir bezeichnen diese Funktion mit $f_{ABC}(w_1, w_2, w_3)$. Ein einfaches funktionentheoretisches Argument zeigt, dass (16) äquivalent ist zu

$$f_{ABC}(w_1, w_2, w_3) = f_{BAC}(w_3, w_2, w_1). \tag{17}$$

Ausserdem gilt (7), welches aussagt, dass

$$f_{ABC}(w_1, w_2, w_3) = f_{ACB}(w_2, w_1, w_3). \tag{18}$$

(17) und (18) gelten natürlich nur in den Regularitätspunkten von f. Ihr Sinn ist, dass die verschiedenen Funktionen f sich durch eine einzige analytische Funktion ausdrücken lassen.

Im Beispiel werden wir (17) und (18) dadurch befriedigen, dass wir alle Funktionen $f_{XYZ}(w_1, w_2, w_3)$ gleich einer in w_1, w_2, w_3 symmetrischen Funktion $f(w_1, w_2, w_3)$ setzen werden.

Diese Funktion muss regulär analytisch sein für Werte, die sich wie fogt darstellen lassen

$$w_1 = (p_1 + ip_2)^2 \qquad w_2 = (q_1 + iq_2)^2 \qquad w_3 = (p_1 + q_1 + ip_2 + iq_2)^2 \tag{19}$$

wobei $p_2 \in V_+$ und $q_2 \in V_+$. Ausserdem werden wir zu verifizieren haben, dass (16) unter den Bedingungen von (11) und (11') erfüllt sind.

Die Vertex-Funktion schliesslich ist durch

$$\Gamma_A(w) = f_{ABC}(M_B^2, M_C^2, w) \tag{20}$$

definiert. Unser Beispiel wird $M_B = M_C$ annehmen und diese Masse auf 1 normieren.

§ 3. Abschätzungen über das Regularitätsgebiet von $f(w_1, w_2, w_3)$

Das durch (2.19) charakterisierte Gebiet ist vollständig bekannt[8]). Für unsere Zwecke ist es aber bequemer, nur mit einer Approximation dieses Gebietes zu arbeiten. Die nötigen Abschätzungen werden in diesem Paragraphen hergeleitet.

Uns interessiert nur derjenige Teil des Regularitätsgebietes, für den $u_k > 0$ für $k = 1, 2, 3$. Dabei ist $w_k = u_k + iv_k$ gesetzt. Diese Einschränkung bedeutet offenbar

$$p_1^2 > p_2^2 > 0,\ q_1^2 > q_2^2 > 0,\ (p_1 + q_1)^2 > (p_2 + q_2)^2 > 0 \tag{1}$$

d. h. p_1, q_1 und $p_1 + q_1$ sind immer zeitartig.

Unter dieser Einschränkung gelten die folgenden Abschätzungen:

1. *Abschätzung:* Falls $v_1 > 0$ und $v_2 > 0$ dann ist $u_3 < (\sqrt{u_1} - \sqrt{u_2})^2$. *Beweis:* Zunächst folgt aus $v_1 > 0$, dass $p_1 \in V_+$ und aus $v_2 < 0$, dass $q_1 \in V_-$. Zu zeigen ist dann

$$(p_2\, q_2) - (p_1\, q_1) > \sqrt{p_1^2 - p_2^2}\,\sqrt{q_1^2 - q_2^2} \tag{2}$$

Das Minimum der linken Seite bei fester rechter Seite wird offenbar für $p_1 = -\lambda q_1$ und $p_2 = \mu q_2$ erreicht. Dann bedeutet (2)

$$\mu q_2^2 + \lambda q_1^2 > \sqrt{\lambda^2 q_1^2 - \mu^2 q_2^2}\sqrt{q_1^2 - q_2^2} \tag{3}$$

was erfüllt ist.

2. *Abschätzung:* Falls $v_1 > 0$, $v_2 < 0$ und $v_3 > 0$, dann ist $u_1 - u_2 > 0$.

Beweis: Es ist

$$u_1 - u_2 = p_1^2 - p_2^2 - q_1^2 + q_2^2$$

$$= [(p_1 + q_1)^2 - (p_2 + q_2)^2] + 2\, q_2\, (p_2 + q_2) - 2\, q_1\, (p_1 + q_1). \tag{4}$$

Nun bedeutet $v_3 > 0$, dass $p_1 + q_1 \in V_+$. Andererseits ist $q_1 \in V_-$. Daher ist jeder Term der rechten Seite positiv.

3. *Abschätzung:* Falls $v_1 > 0$ und $v_2 > 0$, dann ist auch $v_3 > 0$. Falls ausserdem noch Re $w_1 w_2 = u_1 u_2 - v_1 v_2 > 0$, dann ist auch $u_3 - u_1 - u_2 > 0$.

Beweis: Aus der Voraussetzung folgt, dass $p_1 \in V_+$ und $q_1 \in V_+$. Daher ist $v_3 = 2\,(p_1 + q_1)\,(p_2 + q_2) > 0$.

Nun soll weiter gelten

$$(p_1^2 - p_2^2)\,(q_1^2 - q_2^2) - 4\,(p_1\, p_2)\,(q_1\, q_2) > 0 \tag{5}$$

und daraus soll

$$u_3 - u_1 - u_2 = 2\,((p_1\, q_1) - (p_2\, q_2)) > 0 \tag{6}$$

folgen. Bezeichnen wir den (hyperbolischen) Winkel zwischen p_1 und p_2 mit χ_1 ($\chi_1 > 0$) und analog den zwischen q_1 und q_2 mit χ_2, dann lautet (5)

$$(p_1^2 - p_2^2)\,(q_1^2 - q_2^2) - 4\sqrt{p_1^2\, p_2^2\, q_1^2\, q_2^2}\; Ch\,\chi_1\, Ch\,\chi_2 > 0\,. \tag{7}$$

Setzt man weiter $\Psi_1 = \sphericalangle\, p_1 q_1$ und $\Psi_2 = \sphericalangle\, p_2 q_2$, dann gilt $\Psi_2 \leqq \chi_1 + \chi_2 + \Psi_1$ also

$$u_3 - u_1 - u_2 = 2\left[\sqrt{p_1^2 q_1^2}\;\; Ch\,\Psi_1 - \sqrt{p^2 q_2^2}\; Ch\,\Psi_2\right]$$

$$\geqq 2\left[\sqrt{p_1^2 q_1^2}\;\; Ch\,\Psi_1 - \sqrt{p_2^2 q_2^2}\; Ch\,(\chi_1 + \chi_2 + \Psi_1)\right]$$

$$> 2\left[\sqrt{p_1^2 q_1^2} - 4\sqrt{p_2^2 q_2^2}\; Ch\,\chi_1\, Ch\,\chi_2\right] Ch\,\Psi_1 \tag{8}$$

und mit (7)

$$u_3 - u_1 - u_2 > \frac{2}{\sqrt{p^2 q^2}}\left[\, p_1^2 q_1^2 - (p_1^2 - p_2^2)\,(q_1^2 - q_2^2)\,\right] > 0. \tag{9}$$

§ 4. Das Beispiel

Es seien $a > 0$, $b > 0$ und $c > 0$. Ausserdem werde $d = b + ic$ gesetzt. Weiter sei

$$z = x + iy = \sqrt{1 + a^2 - w} \tag{1}$$

wobei die Wurzel für positiven Radikanden positiv gewählt ist.

Wir setzen dann (siehe § 2 Ende)

$$f(w_1, w_2, w_3) = (z_1 + z_2 + z_3 - d)^{-1} \tag{2}$$

und behaupten, dass diese Funktion in dem im vorigen Paragraphen diskutierten Gebiet regulär sei, falls nur

$$1 + a^2 - (b + c)^2 > 0 \tag{3}$$

ist. Eine Singularität tritt in (2) auf, falls $z_1 + z_2 + z_3 = d$ ist. Da aber (1) die Geschnittene w-Ebene auf $Re\, z > 0$ abbildet und uns Singularitäten nur interessieren, falls sie in der geschnittenen Ebene liegen, können wir uns auf solche beschränken, für die gilt $0 < Re\, z_k < b$. Dieser Streifen aber wird durch die Umkehrung von (1) auf das Innere einer nach rechts offenen Parabel mit Scheitel in $w = 1 + a^2 - b^2 > 0$ abgebildet. $f(w_1, w_2, w_3)$ hat also nur Singularitäten, falls gleichzeitig $u_k > 0$ für $k = 1, 2, 3$. Das war die Voraussetzung, unter denen die Abschätzungen des § 3 hergeleitet wurden.

Jetzt definieren wir $z_3 = d - z_1 - z_2$ und entsprechend

$$w_3 = 1 + a^2 - (d - z_1 - z_2)^2. \tag{4}$$

Nun wollen wir zeigen, dass der Punkt $w_1 = 1 + a^2 - z_1^2$, $w_2 = 1 + a^2 - z_2^2$ und w_3 unter keinen Umständen die Abschätzungen aus § 2 erfüllt.

Zuerst untersuchen wir, unter welchen Bedingungen die 1. Abschätzung verletzt ist. Dort ist die wesentliche Voraussetzung $v_1 v_2 < 0$, welche sich auf $y_1 y_2 < 0$ abbildet. Weiter schreiben wir die 1. Abschätzung passend $u_1 + u_2 - u_3 > 2\sqrt{u_1 u_2}$. Es ist dann zu untersuchen, wann die umgekehrte Ungleichung gilt.

Nach (4) und (1) wird

$$\begin{aligned} u_1 + u_2 - u_3 = 1 + a^2 - b^2 + c^2 + 2(b - x_1)(b - x_2) \\ - 2(c - y_1)(c - y_2) \end{aligned} \tag{5}$$

andererseits aber

$$\begin{aligned}\sqrt{u_1}\,\sqrt{u_2} &= \sqrt{1+a^2-x_1^2+y_1^2}\,\sqrt{1+a^2-x_2^2+y_2^2}\\ &\geqq \sqrt{1+a^2-x_1^2}\,\sqrt{1+a^2-x_2^2}+|y_1\,y_2|\\ &\geqq \sqrt{1+a^2-b^2+(b^2-x_1^2)}\,\sqrt{1+a^2-b^2+(b^2-x_2^2)}-y_1\,y_2\\ &\geqq 1+a^2-b^2+\sqrt{b^2-x_1^2}\,\sqrt{b^2-x_2^2}-y_1\,y_2 \qquad (6)\end{aligned}$$

wobei die Schwarz'sche Ungleichung und die Beschränkung $0 \leqq x_k \leqq b$ verwendet worden sind. Anwendung der letzten Tatsache liefert weiter

$$\sqrt{u_1\,u_2} \geqq 1+a^2-b^2+(b-x_1)\,(b-x_2)-y_1\,y_2. \qquad (7)$$

Vergleicht man (5) mit (7), so findet man, dass $u_1+u_2-u_3 < 2\sqrt{u_1\,u_2}$ falls nur

$$y_1+y_2 < \frac{1+a^2-b^2+c^2}{2\,c} \qquad (8)$$

ist.

Jetzt wird gezeigt, dass in den verbleibenden Fällen mit $y_1\,y_2 < 0$ die 2. Abschätzung verletzt ist. Wir setzen also die Negation von (8) voraus. Den Voraussetzungen der 2. Abschätzung entspricht $y_1 < 0$, $y_2 > 0$. Dann wird

$$y_3 = c-y_1-y_2 \leqq c-\frac{1+a^2-b^2+c^2}{2\,c} < 0 \qquad (9)$$

was im Einklang steht zu $v_3 > 0$. Aber jetzt wird

$$\begin{aligned}u_1-u_2 &= -(x_1+x_2)\,(x_1-x_2)+(y_1+y_2)\,(y_1-y_2) \leqq b^2-(y_1+y_2)^2\\ &< -\left[\frac{1+a^2-(b+c)^2}{2\,c}\right]^2 < 0. \qquad (10)\end{aligned}$$

und das steht im Widerspruch mit der 2. Abschätzung.

Zum Schluss bleibt noch die Diskussion des Falles $v_1\,v_2 > 0$ oder $y_1\,y_2 > 0$. Gemäss der 3. Abschätzung bietet nur der Fall Interesse, für den auch $v_1\,v_2 > 0$ oder $y_1\,y_2 > 0$. Weil aber $y_1+y_2+y_3 = c > 0$ muss notwendig $0 \leqq y_k \leqq c$. Unter dieser Voraussetzung wird

$$\begin{aligned}u_3-u_1-u_2 &\leqq -\left[1+a^2-b^2+c^2+2\,(b-x_1)\,(b-x_2)-2\,c^2\right]\\ &< -\left[1+a^2-b^2-c^2\right] < 0 \qquad (11)\end{aligned}$$

was der 3. Abschätzung wiederspricht.

Aus der eben durchgeführten Verifikation schliessen wir, dass

$$r(p, q) = (z_1 + z_2 + z_3 - d^\dagger)^{-1} \tag{12}$$

die Fouriertransformierte einer invariant-retardierten Funktion ist. Wir identifizieren sie mit den 6 Funktionen r_{XYZ} aus § 2. Die Gleichungen (2.16) sind dann erfüllt, sofern nur $p^2 < 1 + a^2$, $q^2 < 1 + a^2$ und $(q - p)^2 < 1 + a^2$ ist. Unser Beispiel erfüllt also alle in § 2 gestellten Forderungen, falls $1 + a^2 \geqq m_X^2$ für $X = A, B, C$.

Für die Vertex-Funktion ergibt sich mit $M_A = M_B = 1$

$$\Gamma_A(w) = (z + 2a - d)^{-1}. \tag{13}$$

$\Gamma_A(w)$ hat offenbar einen Pol bei $z = d - 2a = b - 2a + ic$. Dieser liegt in der geschnittenen w-Ebene, wenn

$$b - 2a > 0. \tag{14}$$

Die Existenz eines solchen Poles ist mit der Gültigkeit einer Dipersionsrelation unverträglich. Diese Kalamität kann in unserem Beispiel nur auftreten, falls $a^2 < 1/3$ ist. Das bedeutet im Fall des Nukleon-Vertex

$$\frac{M + \mu}{M} < \frac{2}{\sqrt{3}}$$

was erfüllt ist.

Es würde zu weit führen, wenn der Verfasser alle Physiker namhaft machen wollte, denen er im Hinblick auf diese Arbeit verpflichtet ist. Besonderen Dank schuldet er J. R. Oppenheimer, dem Direktor des Institute for Advanced Study, für die Einladung zu einem längeren Aufenthalt in Princeton und der *National Science Foundation* für ihre finanzielle Unterstützung.

Anmerkung bei der Korrektur. Drei neue Arbeiten von R. Karplus, C. Sommerfield, E. Wichmann; Y. Nambu und R. Öhme (alle im Druck) befassen sich u. a. mit der Vertex-Funktion in der niedrigsten störungstheoretischen Näherung. Vergleiche dazu auch G. Källen und A Wightman[8]) (im Erscheinen in Kgl. Danske Vidensk. Selskab, Mat.-fys. Medd.). Appendix III. Während die Autoren zu einer beträchtlichen Klärung der Verhältnisse auf der reellen Achse gelangen, bleibt das eventuelle Auftreten komplexer Singularitäten vollständig im Dunkeln.

Literatur

[1]) N. N. Bogoljubow, B. W. Medwedew und M. K. Poliwanow, Problem der Dispersionsrelationen, Verlag Gostechisdat.
Vervielfältigte Vorlesungsausarbeitungen durch das Institute for Advanced Study, Princeton N. J.

[2]) J. Bremermann, R. Oehme und J. G. Taylor, Phys. Rev. *109*, 2178 (1958) – In dieser Arbeit findet sich das zu besprechende Beispiel in Fussnote[18]).

[3]) V. Glaser, H. Lehmann, K. Symanzik und W. Zimmermann, Nuovo Cimento *6*, 1121 (1957) und frühere Arbeiten.

[4]) Y. Nambu, Nuovo Cimento *6*, 1064 (1957).

[5]) A. Wightman, Phys. Rev. *101*, 860 (1956).

[6]) G. Källèn und A. Wightman, Rochester Report 1957.

[7]) D. Hall und A. Wightman, Kgl. Danske Vidensk. Selskab, Mat.-fys. Medd. *36*, No. 5 (1957).

[8]) vgl. [6]). Eine neue Arbeit von G. Källèn und A. Wightman wird viel tiefere Resultate einer systematischen Untersuchung des Regularitätsgebietes von $f(w_1, w_2, w_3)$ enthalten.

Corrigenda HPA Vol. 31/1

S. 39. Tabelle B. Addendum: 10^{-6} in den Spalten unter $d_{(u,K)}$, $d_{(u,o)}$, $d_{(T,K)}$, $d_{(T,O)}$.

S. 42. Fussnote [14]) soll heissen W. G. L. Jb. 1953... statt W. et L. Jb. 1953...

S. 42. Fussnote [19]) soll heissen Mehrparametrige... statt Mehrparametrge...

© 1958 by Schweizerische Physikalische Gesellschaft
Société Suisse de Physique. – Società Fisica Svizzera
Nachdruck verboten – Tous droits réservés – Printed in Switzerland

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft

in Romont, am 3./4. Mai 1958

Präsident: Prof. Dr. J. Rossel (Neuchâtel)
Vizepräsident: Prof. Dr. H. H. Staub (Zürich)
Sekretäre: Prof. Dr. J. Ackeret (Zürich)
Dr. K. P. Meyer (Basel)

Allgemeiner Teil

Die Gesellschaft konnte an dieser Tagung das fünfzigjährige Jubiläum ihrer Gründung feiern. Prof. Edgar Meyer, selbst eines der gründenden Mitglieder, liess anhand seiner *Reminiszenzen von der Gründung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft vor 50 Jahren* die alten Zeiten vor der Versammlung wieder lebendig werden.

Als ordentliche Mitglieder wurden aufgenommen: Die Herren D. W. Mehl (Mexico), R. Dessoulavy (Lausanne), Ch.-N. Martin (Paris), D. Roux (Genève), P. J. Frank (Genève), S. Methfessel (Adliswil-Zürich), P. Niklaus (Allschwil BL), P. Grassmann (Zürich), W. Marti (Winterthur), M.-A. Nicolet (Basel), C. Joseph (Lausanne), G.-A. Grin (Lausanne), D. Bovet (Lausanne), J. Weber (Neuchâtel), D. Speiser (Genève), J. Kern (Fribourg), E. Jeannet (Neuchâtel), E. Vaucher (Neuchâtel), J.-W. Sunier (Zürich), H. Loeliger (Zürich), E. Brun (Zürich), H.-J. Gerber (Zürich), A. Janner (Carouge GE), D. Chauvy (Neuchâtel), P. Verstraete (Lausanne), P. Kartaschoff (Neuchâtel), P. Santschi (Basel), H.-J. Stocker (Zürich), A. Botta (Lausanne).

Den im Dezember 1957 verstorbenen Mitgliedern, Prof. P. Gruner und Prof. A. Jaquerod, wurden von ihren Nachfolgern im Amte, Prof. A. Mercier und Prof. J. Rossel, Nachrufe gewidmet, die hier nachfolgend wiedergegeben sind.

Die SPG zählt zurzeit 534 Mitglieder.

Die Jahresrechnung und der Revisorenbericht werden vorgelegt und genehmigt.

Prof. M. Fierz, Redaktor der Helvetica Physica Acta, erstattet Bericht über die Situation unserer Zeitschrift.

Prof. A. Perrier, Präsident des Schweiz. Nationalkomitees für Physik, erstattet ebenfalls seinen jährlichen Bericht. Er ist von diesem Posten nunmehr zurückgetreten. Sein Nachfolger ist Prof. Paul Huber (Basel).

Zum Abschluss der Frühjahrstagung in Romont trafen sich am Sonntagmittag noch ungefähr 50 Personen zu einem Ausflug nach Gruyère, wo sich unsere Gesellschaft, gleich wie am Samstagabend in Romont, der Gastfreundschaft der «Electroverre Romont S.A.» erfreuen durfte.

Die nächste Tagung wird im Rahmen der 138. Jahresversammlung der Schweizerischen Naturforschenden Gesellschaft am 13. und 14. September 1958 in Glarus stattfinden.

PAUL GRUNER (1869–1957)

Paul Gruner *est décédé le 11 décembre 1957, un mois avant d'atteindre l'âge de 89 ans.*

Issu d'une des plus anciennes familles de la Ville de Berne, c'est là qu'il a développé la plus grande partie de son activité. Docteur de l'Université de Zurich, il fit aussi un séjour d'étude en Grande-Bretagne. Maître au Gymnase Libre puis Privatdocent dès 1894, il fut nommé professeur à l'Université de Berne en 1903. C'est donc lui qui a occupé la première chaire de physique théorique et mathématique qui fut créée et expressément désignée comme telle en Suisse.

P. Gruner *a été recteur de l'Université, membre du Comité Central de la Société helvétique des Sciences naturelles où il a joué un rôle fort en vue en particulier à la station scientifique du Jungfraujoch et dans diverses commissions. Il a été dès le début membre de la Société Suisse de Physique qu'il a présidée autrefois, et il a rendu des services particulièrement méritoires dans la publication des travaux suisses du domaine de la physique, surtout après la création des Helv. Phys. Acta, puisqu'il en a été le distingué rédacteur pendant un très grand nombre d'années. Il ne fait pas de doute que c'est à* P. Gruner *que l'on doit d'avoir donné très tôt un éclat que les Helvetica Physica Acta ont gardé depuis et qui s'est intensifié d'année en année.*

P. Gruner *fut un pédagogue de premier ordre.*

Dans ses recherches, il fut un passionné d'optique, théorique et expérimentale. Cependant il débuta par l'étude du rayonnement ainsi que par celle de l'énergétique. Il a aussi publié des travaux sur la radioactivité, la théorie cinétique, la théorie des électrons, les potentiels thermodynamiques, la relativité restreinte et ses représentations graphiques, l'ancienne théorie des quanta...

Mais le grand problème qui devint la ligne de conduite de ses travaux scientifiques fut celui des milieux troubles, en particulier le ciel diurne et le

ciel crépusculaire. C'est dans ce domaine qu'il s'est fait un nom, tant par des travaux théoriques que par des observations minutieuses. Ses monographies sur la lumière crépusculaire sont classiques.

En dehors de ses recherches en physique et de sa charge professorale, P. Gruner *s'est voué de toute son âme à la cause du protestantisme. Il était profondément religieux et il a écrit de nombreuses études sur la nature divine des choses.*

A. Mercier.

ADRIEN JAQUEROD (1877–1957)

Nous tenons à rendre ici un hommage déférent et amical au Professeur Adrien Jaquerod, *ancien directeur de l'Institut de Physique de l'Université de Neuchâtel, fondateur et ancien directeur du Laboratoire suisse de recherches horlogères, décédé le 21 décembre 1957 à l'âge de 80 ans.*

Durant sa longue carrière de chercheur et de pédagogue, il a donné l'exemple d'un enthousiasme et d'une curiosité scientifiques inaltérables. Une fraîcheur intellectuelle peu ordinaire l'a animé jusqu'à ses derniers moments. Ami des jeunes, entraîneur d'hommes, pédagogue exigeant et efficace, A. Jaquerod *était un expérimentateur né, dont les doigts habiles transformaient en instrument de physique l'objet le plus banal; il fut un noble représentant de cette race de physiciens en voie de disparition, balayés par les progrès des techniques électroniques. Ses travaux dans le domaine de la physique des gaz, dont il reste des marques définitives dans les grandes tables de constantes, en radioactivité, dans les domaines de l'élasticité, de la métrologie et de la chronométrie, ont fait de lui un savant connu et estimé.*

Notre société lui doit beaucoup. En 1908, jeune professeur, il participait à sa fondation; à deux reprises il en assuma la présidence et il fut en 1927 un des initiateurs des Helvetica Physica Acta. Toujours très fidèle aux séances de la Société Suisse de Physique auxquelles il apporta de nombreuses contributions scientifiques A. Jaquerod *restera, j'en suis certain, dans la mémoire de tous ceux qui l'on connu.*

Il n'était pas qu'un cerveau, il était un homme que de nombreuses attaches liaient à la nature; ami passionné de la montagne, il était devenu une figure très connue d'un beau coin du Valais, tout comme son ami le violoniste André de Ribeaupierre. L'eau et ses joies le fascinaient également; navigateur invétéré, il écuma le lac de Neuchâtel par tous les temps et par tous les vents.

Durant les 10 ans où j'ai eu le privilège de travailler presque porte à porte avec lui, malgré la différence d'âges et les réserves que souvent l'on manifeste à l'égard d'un jeune successeur, A. Jaquerod *m'a constamment appuyé et soutenu de sa bienveillance et de son amitié. Je lui en conserverai avec mon estime et mon admiration une fidèle gratitude.*

J. Rossel.

Wissenschaftlicher Teil

Die Beiträge aus dem Gebiete der angewandten Physik (14 Mitteilungen) erscheinen in der «Zeitschrift für angewandte Mathematik und Physik (ZAMP).

Ein Rechenprogramm zur Auswertung der Rotationsspektren starrer Moleküle

von F. KNEUBÜHL, T. GÄUMANN, T. GINSBURG und Hs. H. GÜNTHARD
(Organisch-Chemisches Laboratorium, ETH. Zürich)

Ein wichtiges Gebiet der Mikrowellenspektroskopie ist die Untersuchung reiner Rotationsübergänge[1]). Ein Molekül ohne innere Drehbarkeit (z. B. H_2CCF_2) verhält sich im Gaszustand in erster Näherung wie ein kräftefreier starrer Kreisel. Die drei Hauptträgheitsmomente desselben bestimmen sein rotatorisches Verhalten und seine Energieniveaux. Anstelle von $I_A \leqq I_B \leqq I_C$ werden häufig die Rotationskonstanten A, B, C verwendet:

$$A = \frac{h}{8\pi^2 I_A} \qquad B = \frac{h}{8\pi^2 I_B} \qquad C = \frac{h}{8\pi^2 I_C} .$$

Für die Niveauberechnung stehen Tabellen zur Verfügung[2])[3]). Das permanente, elektrische Dipolmoment des Moleküls bestimmt die Übergangsregeln.

Folgende zwei mathematischen Probleme stellen sich bei der Auswertung der Rotationsspektren:

1. Berechnung der Lage der Absorptionslinien $f_{ber.}(A, B, C)$ in einem gewünschten Frequenzintervall zu gegebenen A, B, C.

2. Berechnung von A, B, C aus einer Anzahl gemessener Absorptionsfrequenzen $f_{k,gem.}$, die auf 6–7 Dezimalen bestimmt wurden.

Mit Hilfe von Tabellen sind diese Rechnungen zeitraubend und teilweise nur ungenau durchführbar. Deshalb wurde ein Programm für die ERMETH (elektronische Rechenmaschine der ETH.) zur Lösung dieser Probleme entwickelt. Es umfasst total 1000 Befehlspaare und belegt 700 Rechenzellen. Die ERMETH schränkt die Rechenzeit mit Tabellen von einer Woche auf einige Stunden ein. Der Genauigkeitsgewinn ist am untenstehenden Beispiel ersichtlich.

Die ERMETH liefert bei der 1. Aufgabe nach Eingabe von A, B, C die Absorptionsfrequenzen auf 11 Dezimalen und ihre Indizierungen.

Die 2. Aufgabe wird prinzipiell wie folgt gelöst: Nach Eingabe der gemessenen Frequenzen $f_{k,gem.}$, eines Satzes von Rotationskonstanten

A_m, B_m, C_m und vorgeschriebenen Intervallen δA_m, δB_m, δC_m stellt die ERMETH folgendes lineares Gleichungssystem auf:

$$k = 1 \cdots n \ , \ n \geqslant 3$$

$$f_{k,gem.} - f_{k,ger.}(A_m, B_m, C_m) =$$
$$= \frac{\Delta A_m}{\delta A_m} \left\{ f_{k,ger.}(A_m + \delta A_m, B_m, C_m) - f_{k,ger.}(A_m, B_m, C_m) \right\}$$
$$+ \frac{\Delta B_m}{\delta B_m} \left\{ f_{k,ger.}(A_m, B_m + \delta B_m, C_m) - f_{k,ger.}(A_m, B_m, C_m) \right\}$$
$$+ \frac{\Delta C_m}{\delta C_m} \left\{ f_{k,ger.}(A_m, B_m, C_m + \delta C_m) - f_{k,ger.}(A_m, B_m, C_m) \right\}.$$

Dieses wird nach der Methode der kleinsten Quadrate aufgelöst:

$$A_{m+1} = A_m + \Delta A_m \qquad B_{m+1} = B_m + \Delta B_m \qquad C_{m+1} = C_m + \delta C_m$$

$$S = \sum_{k=1}^{n} \left\{ f_{k,gem.} - f_{k,ger.}(A_{m+1}, B_{m+1}, C_{m+1}) \right\}^2 = \text{Minimum}.$$

Da die $f_k(A, B, C)$ im allgemeinen keine linearen Funktionen sind, ist obige Rechnung mehrmals zu durchlaufen ($m = 0, 1, 2, 3 \ldots$).

Als Beispiel sei hier die Auswertung der Messungen von J. H. BURKHALTER[4]) im 1-cm-Gebiet an Cyclopentanon angeführt:

9 Absorptionslinien im Bereich 17–25 kMHz, Angabe auf 7 Dezimalen.

$m = 0$ Auswertung durch J. H. BURKHALTER

$m = 1,2$ sukzessive Verbesserung mit Hilfe der ERMETH

S	$m = 0$	2,050 MHz²	A	$m = 0$	6,621440 kMHz
	1	1,691812 MHz²		1	6,621811673 kMHz
	2	1,691807 MHz²		2	6,621811368 kMHz
B	$m = 0$	3,351994 kMHz	C	$m = 0$	2,410217 kMHz
	1	3,351954050 kMHz		1	2,410269909 kMHz
	2	3,351954044 kMHz		2	2,410269914 kMHz

Literatur

[1]) Zusammenfassender Artikel W. MAIER, Ergebnisse der exakten Naturwissenschaften, Bd. 24, S. 275–370 (1957).

[2]) KING, HAINER, CROSS, J. Chem. Phys. **11,** 27 (1943).

[3]) TOWNES, SCHAWLOW, Microwave Spectroscopy, McGraw Hill, Anhang, 1955.

[4]) J. H. BURKHALTER, J. Chem. Phys. **23,** 1172 (1955).

Absorptionsspektrum des NO-Moleküls, Feinstruktur-Analyse der δ- und β-Banden und homogene Störung $C\,^2\Pi$ - $B\,^2\Pi$.

von A. LAGERQVIST (Stockholm) und E. MIESCHER (Basel)

Erscheint zurzeit ausführlich in den Helv. Phys. Acta

Comparaison entre déterminations de temps astronomiques et atomiques

par J. Bonanomi, J. De Prins, J. Herrmann et P. Kartaschoff
(Laboratoire suisse de recherches horlogères et Institut de Physique, Neuchâtel, Suisse)

et

J.-P. Blaser, M. Cavedon, R. Payot et W. Schuler
(Observatoire Cantonal de Neuchâtel, Suisse)

Depuis janvier 1957 une horloge à quartz, reliée à la batterie de l'Observatoire de Neuchâtel est contrôlée à l'aide d'un étalon de fréquence (Maser du L.S.R.H. [1]). Ceci a permis de déterminer l'heure par mesures astronomiques d'une part et à l'aide du maser d'autre part.

1. *Déterminations du temps astronomique*

Les déterminations de temps en TU_0 ont été faites à l'aide d'une lunette zénithale photographique (PZT) et d'un astrolabe Danjon [2]) par rapport à l'horloge à quartz contrôlée par le maser. Pour le PZT, une observation présente par rapport à la moyenne du groupe un écart moyen de 7 msec. L'écart moyen d'un groupe de 10 observations peut être évalué à 2,5 msec pour le PZT et à 3,5 msec en moyenne pour l'astrolabe Danjon.

Nous aurons [3]):

$$TU_1 = TU_0 + \Delta\lambda$$

$$TU_2 = TU_1 + \Delta T_s$$

où $\Delta\lambda$ et ΔT_s sont respectivement les corrections tenant compte des déplacements du pôle et des variations saisonnières de rotation de la Terre.

De plus rappelons que le temps des éphémérides est donné par:

$$TE = TU_2 + \Delta T$$

où ΔT tient compte des fluctuations irrégulières de rotation de la Terre et d'un terme séculaire.

2. *Détermination du temps atomique*

1° *Principe de la méthode:* La mesure continue d'une horloge à quartz permet de calculer par intégration l'état de l'horloge. En pratique cette mesure continue n'est pas nécessaire. Avec une horloge à quartz de bonne qualité, une mesure de fréquence bimensuelle permet le calcul de l'état, par interpolation linéaire de la fréquence entre les mesures. Cette procédure, jointe à une précision des mesures de fréquence de $2 \cdot 10^{-10}$ permet la détermination de l'heure avec une précision de l'ordre de quelques msec par an.

Il est de plus possible de contrôler la précision obtenue si l'on dispose d'une batterie d'horloges à quartz, dont les états et les fréquences sont journellement comparés. Il suffit de calculer les états de chaque horloge par intégration des fréquences déterminées à l'aide du maser, et de comparer les différences d'états calculées à celles effectivement mesurées. Les

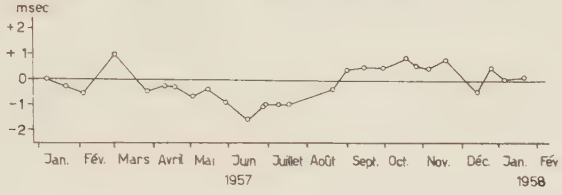


Fig. 1

Contrôle de la méthode de mesure

Les fréquences de deux horloges à quartz ont été déterminées bimensuellement à l'aide d'un maser. Après interpolation linéaire de la fréquence entre les mesures, il a été possible de calculer leur état par intégration de la courbe de fréquence. D'autre part, la différence d'état entre les deux horloges est journellement mesurée à l'aide des comparateurs. Le graphique ci-dessus donne la comparaison entre les différences d'états calculées et celles mesurées.

résultats d'une telle comparaison entre deux horloges sont montrés dans la figure 1.

2° *Mesure de la fréquence:* La fréquence de l'horloge à quartz est mesurée par rapport à celle du maser. La fréquence fournie par ce dernier étant constante dans le temps, on peut considérer que la mesure est faite dans un temps équivalent au TE.

Il a été nécessaire d'attribuer une fréquence TE au maser, en effet la mesure d'une fréquence en TE avec une précision de $5 \cdot 10^{-9}$ n'est obtenue qu'au bout de quelques années. Aussi nous avons donné arbitrairement au maser une fréquence égale à celle calculée en TU_2 pour la période février 1957 à juillet 1957. Le calcul a été fait en ajustant la fréquence de manière à faire coïncider au mieux les déterminations de temps astronomique exprimées en TU_2 et atomique pour cette période.

De ce fait la fréquence de l'horloge à quartz n'est mesurée qu'à une constante près. Comme l'état de l'horloge est obtenu par intégration de la fréquence, le temps atomique (TA) est donné par:

$$TA = TE + Cte \times T .$$

3. *Comparaison des deux déterminations*

Les figures 2 et 3 montrent les déterminations astronomiques en TU_0 et TU_2 rapportées à une horloge linéarisée donnant le TA, tel qu'il est défini ci-dessus.

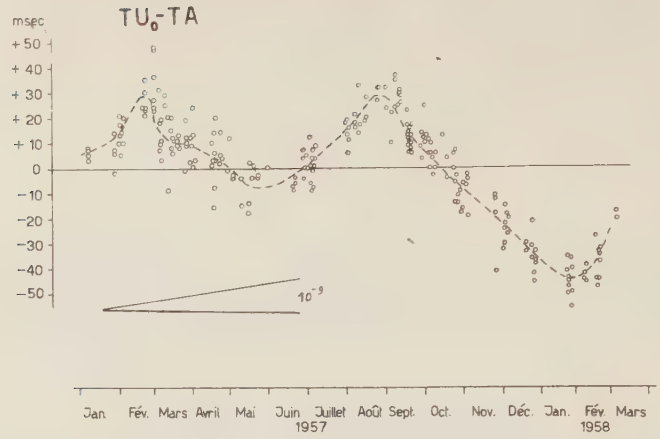


Fig. 2

TU_0 par rapport à TA .

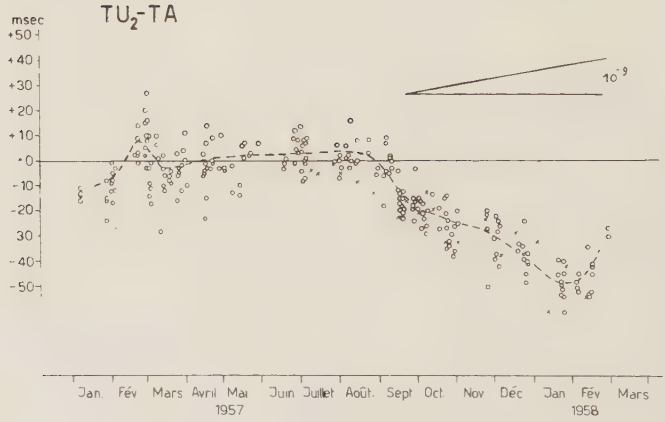


Fig. 3

TU_2 par rapport à TA.

∘ correspond aux mesures faites sur 10 étoiles à l'aide du PZT.

× correspond aus mesures faites sur 100 étoiles à l'aide de l'astrolabe Danjon.

La pente donnée indique le changement d'état correspondant à une variation de fréquence de 10^{-9}. – L'irrégularité reportée en février/mars 1957 peut être attribuable à des conditions météorologiques défavorables (effet d'une inversion de température au dessus du lieu d'observation). – L'écart décelé à partir d'août 1957 est réel et correspond à un changement de fréquence TU_2 rapide de l'ordre de quelques 10^{-9}.

La figure 4 montre les variations du TU_1 par rapport au TA. Nous avons

$$TA = TE + Cte \times T$$

$$TA = TU_1 + \Delta T_s + \Delta T - Cte \times T .$$

Donc: $$TA - TU_1 = \Delta T_s + \Delta T + Cte \times T .$$

C'est dire, que nous avons ainsi déterminé, au terme $Cte \times T$ près, les variations saisonnières et irrégulières de rotation de la Terre.

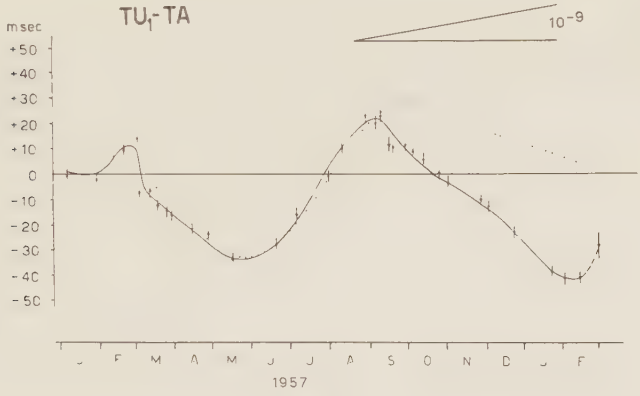


Fig. 4

TU_1 par rapport à TA.

| correspond aux mesures faites sur une centaine d'étoiles à l'aide du *PZT*.
. . . donne les corrections ΔT_s fournies par le BIH.

Conclusions: Cette methode permettra, une fois la fréquence du maser définie en TE, la détermination instantannée d'un temps supposé identique au TE, ceci avec une précision de quelques msec par an. Conjointement avec les observations astronomiques, elle permettra de mesurer très rapidement les variations saisonnières et irrégulières de la Terre.

Bibliographie

[1]) J. Bonanomi, J. De Prins, J. Herrmann et P. Kartaschoff, Helv. Phys. Acta *30*, 288 (1957); *30*, 492 (1957).

[2]) W. Schuler, Journal Suisse d'Horlogerie, N° 9–10 (1957). – Bulletins et Publications de l'Observatoire de Neuchâtel.

[3]) N. Stoyko, Annales françaises de chronométrie **10**, 78 (1956).

Masers oscillant avec des cavités à modes dépendants de la longueur

par J. Bonanomi, J. De Prins et J. Herrmann
(Laboratoire suisse de recherches horlogères et Institut de Physique, Neuchâtel)

Dans un travail précédent[1]), nous avons utilisé les propriétés de cavités possédant plusieurs ventres dans la direction du jet. Dans cette communication nous désirons étudier les propriétés de masers oscillants dans de telles conditions.

Les propriétés d'un oscillateur moléculaire sont décrites par l'équation de Slater[2]):

$$\frac{1}{Q_c} + 2i\,\frac{\omega-\omega_c}{\omega_c} = -4\pi i \int P^{\dagger}\cdot E_n^{\dagger *}\,dV \Big/ \int E^{\dagger}\cdot E_n^{\dagger *}\,dV. \qquad (1)$$

(Pour les notations employées voir référence [2]).

Cette équation est étudiée ici pour les conditions suivantes:

1° La dépendance du champ dans la direction du jet est celle d'un mode $TE_{\cdot\cdot n}$, de plus dans une section transversale ce champ est supposé constant. Nous avons:

$$E(t,z) = E \sin(n\pi z/L)\cos\omega t = E^{\dagger}(z)\exp(i\omega t) + c.\,c.$$

2° Toutes les molécules ont la même vitesse v.

3° Il ne sera pas tenu compte de la saturation.

4° Pour la résolution de l'équation de Schroedinger, nous considérerons que la fonction d'onde du système est donné par la combinaison linéaire que de deux fonctions d'onde.

L'énergie d'un dipole dans ce champ électrique est:

$$H' = -E\cdot\mu = -\hbar x \sin(n\pi t/\tau)\cos\omega t\,.$$

Le moment dipolaire d'une molécule, calculée par la théorie des perturbations donne en première approximation:

$$p = \int \psi^*\,\mu\,\psi\,dq = \bar{\mu}\,a_2^*\,a_1\exp(i\omega_0 t) + \text{c. c.} =$$

$$= i\,\bar{\mu}\,x\exp(i\omega_0 t)\int_0^t \sin(n\pi t'/\tau)\cos\omega t'\exp(-i\omega_0 t')\,dt' + \text{c.c.} + O(x^3)$$

ce qui donne:

$$p^{\dagger}(z) = \frac{i\,\bar{\mu}\,x}{2\left[(n\pi/\tau)^2-(\omega-\omega_0)^2\right]}\left[i(\omega-\omega_0)\sin\frac{n\pi z}{L} - \frac{n\pi}{\tau}\cos\frac{n\pi z}{L} + \right.$$

$$\left. + \frac{n\pi}{\tau}\exp\left(-\frac{i(\omega-\omega_0)\tau z}{L}\right)\right].$$

La polarisation est donnée par:

$$P^{\dagger} = N\,p^{\dagger}/A\,v$$

où N est le nombre de molécules pénétrant dans la cavité par seconde.

Après intégration sur z, l'équation de SLATER devient:

$$1 + 2\,i\,Q_c \frac{\omega - \omega_c}{\omega_c} = \frac{N}{N^0} \frac{2}{(n\pi)^2 - a^2} \left[\frac{2\,(n\pi)^2}{(n\pi)^2 - a^2} (1 - (-1)^n \cos a) + \right.$$
$$\left. + i \left\{ a + (-1)^n \frac{2\,(n\pi)^2}{(n\pi)^2 - a^2} \sin a \right\} \right] \qquad (2)$$

avec la notation suivante:

$$N^0 = h\nu^2 A \,/\, 4\pi^2 \bar{\mu}^2 L\, Q_c\,, \quad a = (\omega - \omega_0)\,\tau, \quad b = 2\,Q_c\,(\omega - \omega_c)/\omega_c\,.$$

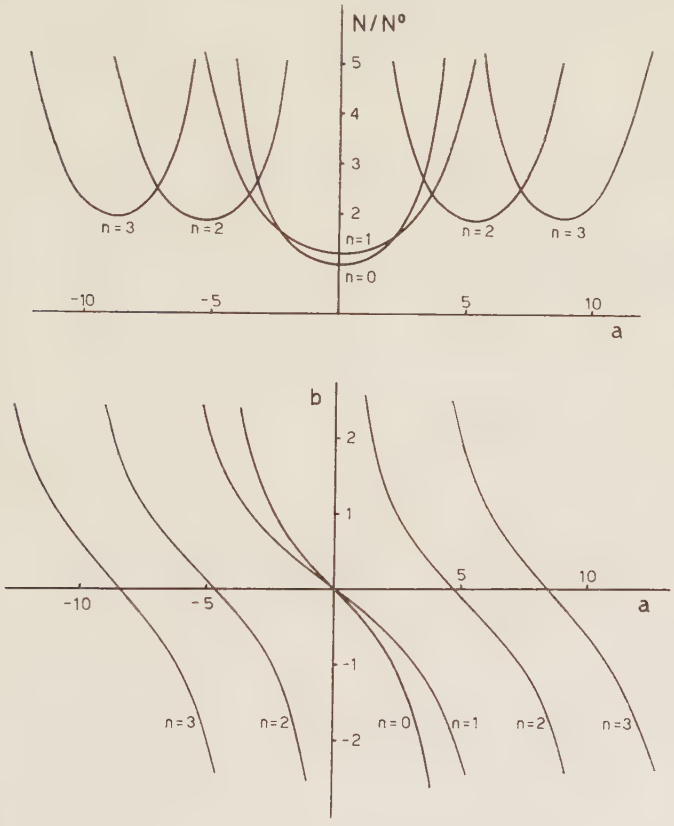


Fig. 1

Les grandeurs N/N^0 et b en fonction de $a = (\omega - \omega_0)\,\tau$.

Le domaine d'oscillation pour un nombre de molécules donné est déterminé par la partie réelle de l'équation (2):

$$N \,/\, N^0 = [(n\pi)^2 - a^2]^2 \,/\, 4(n\pi)^2\,[1 - (-1)^n \cos a] \qquad (3)$$

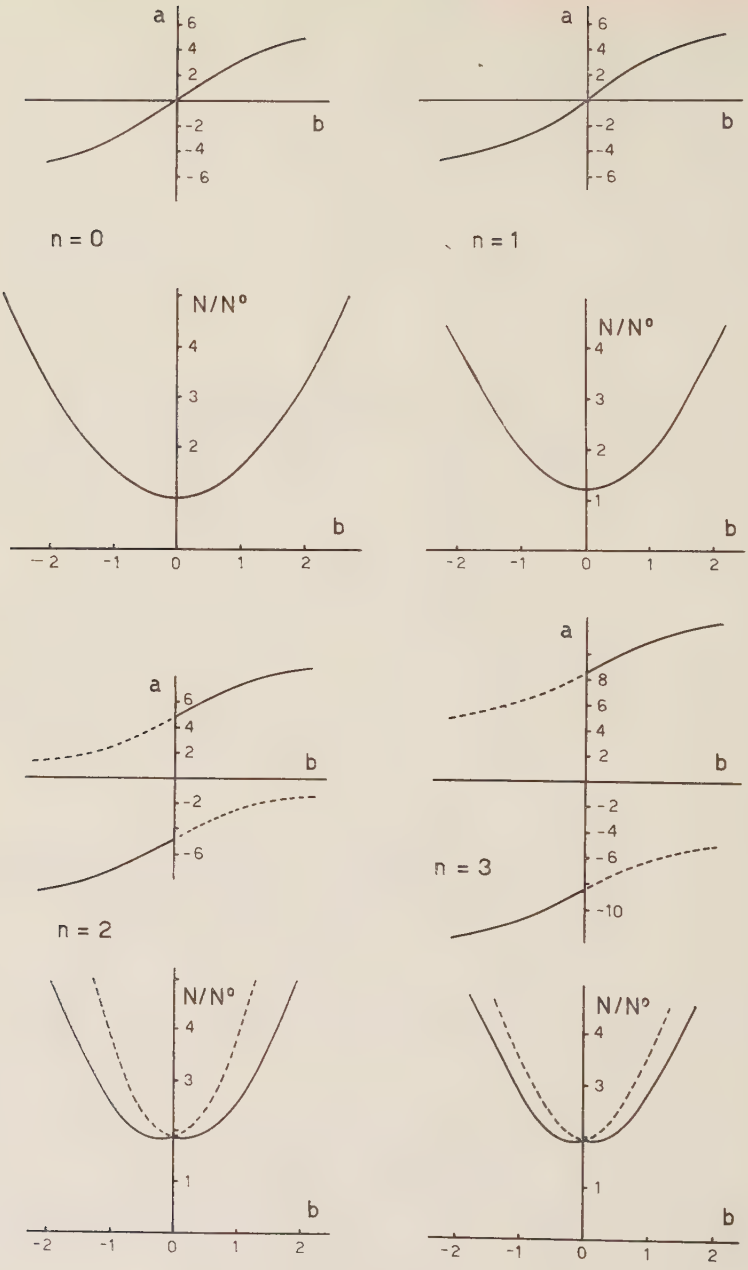


Fig. 2
Propriétés d'oscillation pour quatre cavités.

tandis que la fréquence d'oscillation ω est donnée par la phase de la même équation:

$$b = \{a[(n\pi)^2 - a^2] + (-1)^n 2(n\pi)^2 \sin a\} / 2(n\pi)^2 [1 - (-1)^n \cos a]. \quad (4)$$

Les deux fonctions (3) et (4) sont représentées dans la figure 1 pour les valeurs $n = 1, 2, 3$. A titre de repère la courbe $n = 0$ a également été reportée sur ces graphiques.

Expérimentalement le comportement de ces oscillateurs a été étudié en variant la fréquence de résonnance de la cavité. Pour cette raison, dans la figure 2, N/N^0 et la fréquence d'oscillation ont été rapportés, pour les cas $n = 0, 1, 2, 3$ par rapport au désaccord de la cavité:

$$b \approx 2 Q_c (\omega - \omega_0) / \omega_0 .$$

L'expérience a montré que dans les cas où $n > 1$, il y a possibilité d'oscillation que sur une fréquence, avec un brusque saut lorsque la variable b change de signe.

Le trait plein de la figure 2 indique ce comportement. Les valeurs calculées des sauts de fréquence correspondent aux valeurs mesurées.

Bibliographie

[1]) Bonanomi, De Prins, Herrmann et Kartaschoff, Helv. Phys. Acta *30*, 288 (1957).
[2]) Shimoda, Wang et Townes, Phys. Rev. *102*, 1308 (1956).

Maser oscillant sur la ligne J = 3, K = 2 de NH_3

par J. Bonanomi, J. De Prins, J. Herrmann et P. Kartaschoff
(Laboratoire suisse de recherches horlogères et Institut de Physique, Neuchâtel)

L'absence de structure hyperfine quadrupolaire pour la ligne 3,2 du spectre d'inversion de l'ammoniaque nous a amenés à étudier les caractéristiques d'un maser fonctionnant sur cette ligne. Les premiers résultats ont montré que l'influence de la haute tension appliquée au sélecteur d'état, et du nombre de molécules est plus petite que dans le cas de la ligne 3,3[1]).

Sur nos installations nous avons continué une étude comparative des deux lignes. Il est évident que pour la ligne 3,2 le nombre de molécules total nécessaire pour entretenir une oscillation est plus élevé que dans le cas où l'on utilise la ligne 3,3. En effet une estimation grossière donne:

1° La population de molécules dans l'état 3,2 dans de l'ammoniaque à la température de 300° K est 2,3 fois plus petite.

2° Le nombre de molécules sélectionnées par le séparateur d'état est proportionnel à K^2.

3° La probabilité de transition dans la cavité est également proportionnelle à K^2.

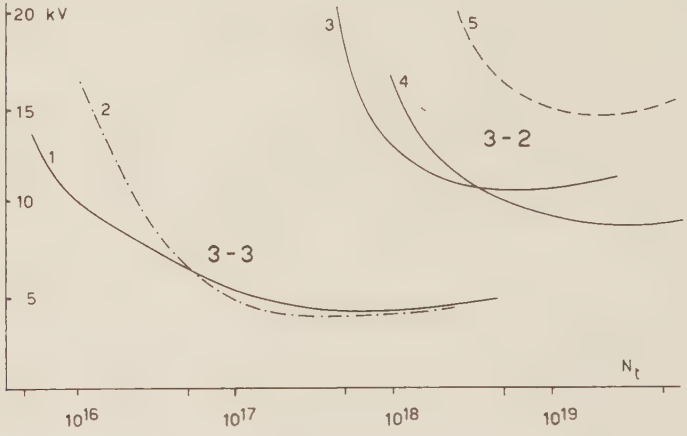


Fig. 1

Les courbes représentent en fonction du nombre de molécules total, le voltage minimum, appliqué à un sélecteur d'état, nécessaire pour que l'oscillation ait lieu

Conditions expérimentales: Le sélecteur d'état est à 16 pôles, son diamètre moyen est de 1,2 cm. La tension est appliquée à huit pôles, les autres étant à la terre. Les pôles sont des fils métalliques tendus de 0,5 mm de diamètre. La longueur du sélecteur est de 17,5 cm. Les cavités résonnantes utilisées ont une longueur de 19 cm. La courbe 5 se réfère à une cavité de mode TE_{023}, tandis que les autres courbes se réfèrent à des cavités de mode TE_{011}.

Les courbes 1 et 2 ont été obtenues toutes conditions égales sauf deux différents gicleurs; la courbe 1 correspondant à un gicleur de diamètre plus petit que celui de la courbe 2.

Les courbes 3 et 4 correspondent à deux géométries différentes, dans le cas 3 la distance gicleur-sélecteur d'état était plus petite.

Une caractéristique de ces courbes est le fait qu'à partir d'un certain nombre de molécules, une augmentation de ce dernier entraîne une détérioration de l'efficacité du système, ce qui est indiqué par le relèvement des courbes pour les N_t élevés.

Les courbes 1 et 3 correspondent à des conditions expérimentales aussi identiques que possible, les masers oscillant respectivement sur la ligne 3–3 et 3–2. Ceci permet de comparer, toutes conditions égales, le nombre de molécules indispensable dans les deux cas pour obtenir une oscillation. Remarquons que le rapport de ces nombres est voisin de la valeur évaluée.

4° En plus la directivité du gicleur est en première approximation inversément proportionnel à la racine carrée du nombre de molécules total.

Ainsi pour obtenir une même amplitude d'oscillation, il faudra dans le cas de la ligne 3,2 introduire $(2{,}3 \times 9/4 \times 9/4)^2 = 135$ fois plus de molécules.

Ceci correspond à l'ordre de grandeur trouvé expérimentalement (voir fig. 1).

Bibliographie

[1]) J. Bonanomi, J. De Prins, J. Herrmann et P. Kartaschoff, Helv. Phys. Acta *30*, 492 (1957).

Die In-Pb-Legierung und deren Verwendung in einem supraleitenden Verstärker

von S. Gygax
(Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH. Zürich)

Um kleine Gleichspannungen, wie z. B. Hall- und Thermospannungen, auch bei Heliumtemperatur (4,2° K) messen zu können, haben wir einen supraleitenden Verstärker entwickelt. Im Laufe der Untersuchungen an diesem haben wir die Übergangskurven an der supraleitenden Legierungsreihe In Pb gemessen. Zwar existiert darüber eine frühe Arbeit[1]); in dem uns interessierenden Konzentrationsgebiet liegt aber nur ein Messpunkt.

Für die Bestimmung der krit. Felder wurden zwei verschiedene Messmethoden angewandt. Einmal wurde der Widerstand der Proben von 0,5 mm Durchmesser aus einer Strom-Spannungsmessung bestimmt. Meßstrom war für alle diese Messungen 100 mA. Dem entspricht ein Feld an der Drahtoberfläche von 0,8 Gauss. Zusätzlich wurden die krit. Felder aus einer direkten Messung des magnetischen Momentes der Proben bestimmt, die eine Länge von 2 cm und einen Durchmesser von 3 mm aufweisen.

Die Widerstandskurven haben ungefähr den in Fig. 2*b* gezeigten Verlauf. Als krit. Feld wurde der Schnittpunkt des linearen Aufstiegs mit der Feldachse genommen. Bei den magnetischen Messungen wurde für das krit. Feld der Wert beim Schnittpunkt des linearen Aufstiegs mit dem linearen Abfall genommen.

Fig. 1 zeigt die gemessenen krit. Felder bei den entsprechenden Temperaturen für die untersuchten Pb-Konzentrationen. Die ausgezogenen Kurven sind aus Widerstandsmessungen, die gestrichelten aus magnetischen Messungen gewonnen. Die magnetischen Messungen gehorchen mit guter Genauigkeit dem parabolischen Gesetz für H_c:

$$H_c = H_0 \left[1 - (T / T_c)^2\right].$$

Ein Supraleiter mit einer Sprungkurve, wie sie in Fig. 2*b* aufgezeichnet ist, kann für die Verstärkung von kleinen Gleichspannungen benützt werden. Dazu bringt man den Supraleiter durch ein Magnetfeld in den Zwischenzustand. Ein kleines Zusatzfeld ΔH vergrössert bzw. verklei-

nert den Widerstand um ΔR, was sich in einer Spannungsänderung äussert. Die Zusatzfelder werden durch die Meßspannung erzeugt.

In Fig. 2*a* ist der Verstärker schematisch dargestellt. Der Meßstrom durch den Supraleiter geht gleichzeitig durch die Spule, welche das konstante Magnetfeld erzeugt. Über einer Hälfte des Supraleiters liegt je eine von zwei entgegengesetzt gewickelten Spulen, welche die Zusatzfelder ΔH erzeugen. In unseren ersten Versuchen haben wir die Meß-

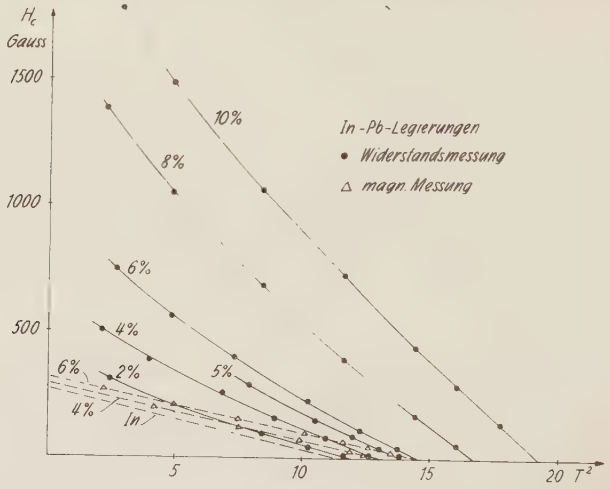


Fig. 1

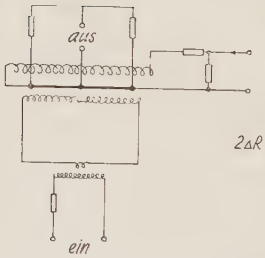


Fig. 2*a*

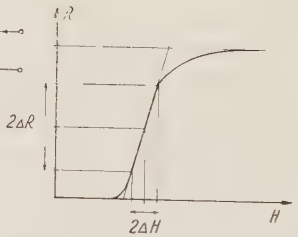


Fig. 2*b*

spannung direkt an die Zusatzspulen gelegt. Dazu musste der Eingangswiderstand sehr klein sein, um genügend grosse Ströme für die Herstellung der Felder zu erhalten. Man kann die Meßspannung aber auch an die Primärseite eines Transformators geben, dessen Sekundärseite aus einem supraleitenden Kreis besteht. Ein solcher Transformator arbeitet dann als Gleichstromtransformator. Untersuchungen damit sind im Gange.

Am Anfang haben wir mit Ta gearbeitet, das bei 4,2° K ein krit. Feld von 150 Gauss besitzt. Es gelang damit, einen Verstärkungsfaktor von ungefähr 10^3 zu erhalten und Spannungen der Grössenordnung 10^{-9} Volt festzustellen. Die Nullpunktsschwankungen sind jedoch von der Grösse von $5 \cdot 10^{-9}$ Volt, d. h. Ta als harter Supraleiter ist im Zwischenzustand nicht sehr stabil. Da bei dieser Temperatur kein passender weicher Supraleiter existiert, wurde die oben erwähnte In-Pb-Legierung herangezogen. Vorversuche haben gezeigt, dass hier die Schwankungen um mehr als einen Faktor 10 kleiner sind.

Die vorliegende Arbeit wurde teilweise aus einem Arbeitsbeschaffungskredit des Bundes finanziert.

Literatur

([1] Meissner, Franz, Westerhoff, Ann. d. Phys. *13*, 505, 1932.

Die Volumenänderung in Vanadium beim Übergang zur Supraleitung

von J. Müller
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH. Zürich)
und H. Rohrer
(Institut für kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH. Zürich)

Aus der Volumendifferenz eines Supraleiters im normalen und supraleitenden Zustand kann die Änderung des kritischen Magnetfeldes mit dem Druck berechnet werden:

$$\frac{\partial H_c}{\partial p} = \frac{V_n - V_s}{V_s} \cdot \frac{4\pi}{H_c} \tag{1}$$

Bei quadratischem Verlauf des kritischen Magnetfeldes $H_c(t)$ ist die Temperaturabhängigkeit dieses Druckkoeffizienten gegeben durch[1])

$$\frac{\partial H_c}{\partial p} = \frac{\partial H_0}{\partial p}(1 + t^2) - \frac{H_0}{\gamma}\frac{\partial \gamma}{\partial p} t^2 \tag{2}$$

mit $t = T/T_c$, H_0 = kritisches Magnetfeld am absoluten Nullpunkt und $\gamma\, T$ = spezifische Elektronenwärme. Weiter lässt sich die Änderung der Sprungtemperatur mit dem Volumen angeben, mit

$$\frac{V}{T_c} \cdot \frac{\partial T_c}{\partial V} = h - \frac{g}{2} \tag{3}$$

wobei h und g die logarithmischen Ableitungen von H_0 bzw. γ nach dem Volumen bedeuten. Daraus kann die Volumenabhängigkeit charakteristischer Grössen der Theorie der Supraleitung von Bardeen *et al.* bestimmt werden.

*

Wir haben zwei Proben Vanadium[3]) untersucht: Va I (7 cm lang, 2 mm ⌀) und Va II (6 cm lang, 1 mm ⌀). Das Prinzip der Messung[1]) ist folgendes: Die Längenänderung der Probe wird mechanisch in eine Winkeländerung umgewandelt und die Ablenkung eines Lichtstrahles beobachtet. Die relativen Messfehler sind kleiner als 2 Å. Für kubische Gitter folgt daraus die Volumenänderung $\Delta V/V = 3\,\Delta l/l$.

Fig. 1 zeigt den Feldverlauf der Längenänderungen. Diese erreichen, entsprechend der graduellen Umwandlung[3]), erst erheblich über dem

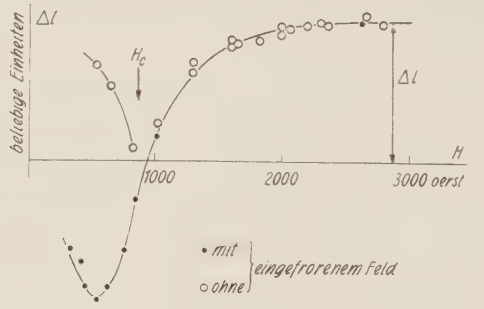


Fig. 1
Δl gegen H

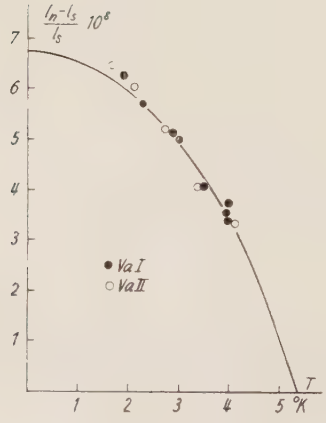


Fig. 2
$\Delta l/l$ gegen T

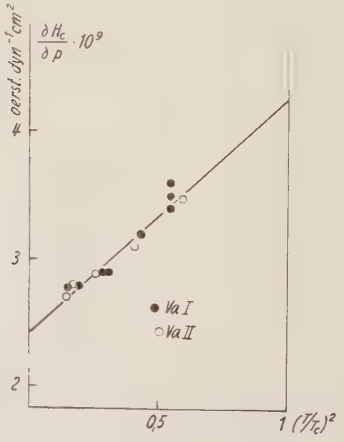


Fig. 3
$\partial H_c/\partial p$ gegen $(T/T_c)^2$

ersten Eindringen des Magnetfeldes ihren maximalen Wert. Man kann zeigen, dass man mit guter Näherung zur Bestimmung von $\partial H_c/\partial p$ nach Gleichung (1) die in Fig. 1 eingezeichneten Werte benützen darf, wobei H_c dem ersten Eindringen des Feldes entspricht. Das für harte

Supraleiter typische Einfrieren der Magnetfelder hat keinen messbaren Einfluss auf die Längenänderungen. Der scheinbare Effekt in unterkritischen Feldern rührt von Kräften der von der Probe verursachten Feldinhomogenitäten auf Lötzinnteile im Probenhalter her und verschwindet für überkritische Felder. In Fig. 2 sind die spezifischen Längenänderungen in Funktion der Temperatur aufgetragen. Die daraus errechneten Werte von $\partial H_c/\partial p$ (Fig. 3) zeigen innerhalb der Messfehler die von Gleichung (1) geforderte quadratische Temperaturabhängigkeit. Die Extrapolation auf $T = 0$ und $T = T_c$ ergibt

$$h = -3{,}8 \qquad g = -0{,}6 \qquad \frac{V}{T_c} \cdot \frac{\partial T_c}{\partial V} = -3{,}5$$

Diese Resultate werden zusammen mit früheren Messungen verschiedener Supraleiter an anderer Stelle diskutiert[2]).

Die vorliegende Arbeit wurde teilweise aus einem Arbeitsbeschaffungskredit des Bundes finanziell unterstützt.

Literatur

[1]) J. L. Olsen und H. Rohrer, Helv. Phys. Acta *30*, 49 (1957).
[2]) B. Lüthi und H. Rohrer, Helv. Phys. Acta *31*, 294 (1958).
[3]) G. Busch und J. Müller, Helv. Phys. Acta *30*, 230 (1957).

Supraleitung in Vanadium-Chrom-Legierungen

von G. Busch und J. Müller
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH. Zürich)

Untersuchungen an Mischkristallen des Vanadiums mit Chrom und anderen Elementen der ersten Übergangsperiode dürften geeignet sein, den Einfluss der Wechselwirkung der Leitungselektronen mit Elektronen teilweise gefüllter innerer Schalen auf die Supraleitung experimentell festzustellen. Diese Wechselwirkung wurde in der Theorie der Supraleitung von Bardeen, Cooper und Schrieffer nicht explicite berücksichtigt. Ein Modell von W. Baltensperger[1]) beschreibt ein derartiges System durch eine entsprechende Änderung der freien Energie der Elektronen.

Die Darstellung einwandfreier Proben von Mischkristallen des Vanadiums mit Chrom für magnetische Untersuchungen im Bereich der Supraleitung stösst auf erhebliche Schwierigkeiten. Grösstmögliche Reinheit, Spannungsfreiheit und Homogenität wurden durch Anwendung des von Van Arkel angegebenen Verfahrens der thermischen Dissoziation der Iodide erreicht. Die zylindrischen Präparate von ca. 1 mm Durchmesser wurden bei 1300° C im Hochvakuum abgeschieden. Die Tief-

temperaturmessungen erfolgten in einem kombinierten Helium-Gas-Flüssigkeitskryostaten und umfassten die Bestimmung der magnetischen Permeabilität im Feld 0 in Funktion der Temperatur für verschiedene Chrom-Konzentrationen sowie die Beobachtung der kritischen Magnetfelder zur Zerstörung der Supraleitung. Die Übergangskurven μ (T) beweisen, dass das Legierungssystem Vanadium Chrom im untersuchten Bereich einphasig ist, was auch durch Messung des Restwiderstandes bestätigt wurde.

Die kritische Temperatur fällt mit zunehmender Chromkonzentration von 5,29° K für reines Vanadium[2]) stark ab und erreicht den extrapolierten Wert 0° K bei ca. 8% Cr. Eine Interpretation dieser Resultate nach der Theorie von Bardeen, Cooper und Schrieffer würde eine starke Abnahme der Dichte der Elektronenzustände an der Fermigrenze für kleine Cr-Konzentrationen verlangen. Schlüsse von den beobachteten kritischen Magnetfeldern auf den Verlauf der Zustandsdichte sind in diesem Falle nicht ohne weiteres zulässig. Es steht jedoch fest, dass eine Berücksichtigung der Austauschwechselwirkung mit 3-d-Elektronen wesentlich ist. Vorläufige Untersuchungen an Mischkristallen des Vanadiums mit Cobalt und Titan unterstützen diese Auffassung. Eine ausführliche Publikation wird folgen.

Der Firma Dupont de Nemours, Wilmington, Del., USA, danken wir für die Überlassung von reinstem Chrom, ebenso Herrn Professor O. Gübeli, ETH., für die Analyse einiger Legierungen.

Literatur

[1]) W. Baltensperger, Publikation folgt später.
[2]) G. Busch und J. Müller, Helv. Phys. Acta *30*, 230 (1957).

Der Einfluss der Austauschwechselwirkung mit unvollständigen inneren Schalen auf die Supraleitung

von W. Baltensperger
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH. Zürich)

Ein ausführlicher Bericht erscheint später.

Messung der Eindringtiefe an supraleitenden Hohlkörpern

von R. Jaggi und R. Sommerhalder
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH. Zürich)

Legt man an einen langen, supraleitenden Hohlzylinder mit Radius R und Wandstärke δ ein homogenes (longitudinales oder transversales) Magnetfeld H_a, das mit der Frequenz ω variiert, so berechnet sich auf Grund der Londonschen Theorie im Innern des Hohlzylinders ein ge-

schwächtes homogenes Wechselfeld H_i, das für $R \gg \delta$ gegeben ist durch die Beziehung

$$\frac{H_i}{H_a} = \frac{1}{\frac{R}{2\lambda}\,\mathrm{Sin}\,\frac{\delta}{\lambda} + \mathrm{Cos}\,\frac{\delta}{\lambda}}, \qquad (1)$$

wobei λ die Londonsche Eindringtiefe bedeutet. Für die Hohlkugel ist im Nenner 2 durch 3 zu ersetzen.

Die Feldabschwächung in der Wand dünner Hohlkörper ist demnach um Grössenordnungen stärker als in massiven Supraleitern. So erhält man z. B. für einen Hohlzylinder mit $R = 0{,}5$ cm und $\delta = \lambda = 500$ Å ein Verhältnis $H_i/H_a \approx 2 \cdot 10^{-5}$. Falls unter derartigen Bedingungen die unmodifizierte Londonsche Theorie gültig ist, ermöglicht die Hohlkörpermethode relativ einfache *absolute* Messungen der Eindringtiefe λ.

In unserer Versuchsanordnung hat das äussere Magnetfeld H_a eine Frequenz von 60 Hz. Das Wechselfeld H_i im Hohlraum wird mit einer Induktionsspule hoher Windungsfläche über einen empfindlichen Vibrationsgalvanometerverstärker gemessen; Feldstärken von 10^{-6} Gauss sind nachweisbar. Wir achten darauf, dass Randeffekte an den Enden der Probe vermieden werden, zudem ist das Erdfeld kompensiert.

Das Einsetzen des Zwischenzustandes kann auf dem Bildschirm eines Kathodenstrahl-Oszillographen sichtbar gemacht werden; es treten im Zwischenzustand viele scharfe Spannungsspitzen auf.

In Vorversuchen mit Zinn- und Indium-Filmen, die mit behelfsmässigen Einrichtungen auf Glas- bzw. Neusilber-Röhrchen aufgedampft wurden, konnten nur kritische Feldstärken erreicht werden, die wesentlich kleiner sind als die Werte für massive Körper. Die magnetische Abschirmung dieser Filme war schwächer als erwartet und zeigte bei grösseren Messfeldern ein ausgeprägt nichtlineares Verhalten. Werten wir die Messungen am dicksten unserer Vorversuchs-Filme ($\delta \approx 1500$ Å, $R = 0{,}6$ cm, $T = 2{,}17$ °K, $H_a = 0{,}1$ Gauss, $H_i/H_a = 2{,}2 \cdot 10^{-5}$) unter Vorbehalt nach Gleichung (1) aus, so ergibt sich eine auf $T = 0$ extrapolierte Londonsche Eindringtiefe $\lambda_0 \approx 1000$ Å.

Die erst kürzlich von SCHAWLOW[1]) publizierten Resultate stimmen mit unseren Erfahrungen gut überein. Gleichzeitig mit SCHAWLOW hat PETER[2]) die Lösung der nichtlokalen Theorie von PIPPARD für den vorliegenden Fall angegeben; unsere vorläufigen experimentellen Ergebnisse rechtfertigen jedoch eine Diskussion des Pippardschen Ansatzes noch nicht. In weiteren Experimenten streben wir an, den Einfluss der Filmqualität auf die kritische Feldstärke und das Abschirmvermögen zu untersuchen.

Literatur

[1]) A. L. SCHAWLOW, Phys. Rev. *109*, 1856(1958).
[2]) M. PETER, Phys. Rev. *109*, 1857 (1958).

Bemerkungen zum Druckeffekt in Supraleitern

von B. Lüthi und H. Rohrer
(Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH. Zürich)

Es sollen die Druckeffekte in Supraleitern im Rahmen der neuen Supraleitungstheorie[1]) diskutiert werden. Aus der Gleichung für die kritische Temperatur T_c

$$k\,T_c = 1{,}14\,\hbar\,\omega\,e^{-\frac{1}{NV}} \tag{1}$$

(mit $\hbar\omega$ = mittlere Phononenergie, N = Dichte der Blochzustände an der Fermioberfläche, V = gemitteltes Matrixelement der Elektron-Phonon- und der Coulomb-Wechselwirkung) erhält man durch Differentiation nach dem Volumen v:

$$\frac{v}{T_c}\frac{\partial T_c}{\partial v} = \frac{v}{\omega}\frac{\partial \omega}{\partial v} + \frac{1}{NV}\left(\frac{v}{N}\frac{\partial N}{\partial v} + \frac{v}{V}\frac{\partial V}{\partial v}\right) \tag{2}$$

Aus den Experimenten[2]) lassen sich einzeln die Volumenänderungen der kritischen Temperatur und der Elektronen-spezifischen-Wärme $\gamma\,T$ (die proportional der Zustandsdichte N ist) bestimmen. Da $\hbar\omega \gg k\,T_c$ gelten muss, $\hbar\omega$ also von der Grössenordnung $k\,\theta$ ist, kann man für die logarithmische Ableitung von ω nach dem Volumen die Grüneisenkonstante c setzen. NV lässt sich aus (1) bestimmen, mit $\hbar\omega = 1/2\,k\theta$. Die Unsicherheit des Wertes von $\hbar\omega$ spielt wegen der logarithmischen Abhängigkeit von NV eine geringe Rolle und liegt innerhalb der Messfehler. Mit diesen Werten lässt sich die Volumenänderung von V nach Gleichung (2) bestimmen.

	$\frac{v}{T_c}\frac{\partial T_c}{\partial v}$	$\frac{v}{\gamma}\frac{\partial \gamma}{\partial v}$	c	NV	$\frac{v}{V}\frac{\partial V}{\partial v}$
In	4,4	1,7	1,9	0,35	−0,8
Sn	6,4	0,5	2,1	0,3	+0,8
Hg	2,0	2,2	1,7	0,44	−2,1
Tl	−1,6	3,3	2,7	0,32	−4,7
Pb	3,0	0,7	2,7	0,49	−0,6
V	−3,6	0	1,4	0,27	−1,3
Ta	5	−40	1,8	0,3	+41

In obiger Tabelle sind die Resultate der bis heute gemessenen Metalle[2])[3]) zusammengestellt. Daraus ist ersichtlich, dass die Volumenabhängigkeit von V für die Nichtübergangsmetalle gering ist. (Hg und Tl zeigen sehr anisotrope Volumenänderungen, und die Extrapolation auf den polykristallinen Wert ist etwas zweifelhaft.) Die Volumenänderung der kritischen Temperatur für Nichtübergangsmetalle kann also im wesentlichen

durch die Änderung der Elektronenzustandsdichte an der Fermifläche erklärt werden.

Im Gegensatz dazu zeigt das Übergangsmetall Ta eine unwahrscheinlich starke Volumenabhängigkeit von γ und V. Nach BALTENSPERGER[4]) ist dies vermutlich auf eine Austauschwechselwirkung zwischen den s- und den $5d$-Elektronen zurückzuführen. Vanadium hingegen zeigt eine relativ normale Volumenabhängigkeit dieser Grössen, in Übereinstimmung mit Resultaten aus Neutronenstreuexperimenten[5]), die auf eine leere $3d$-Schale von metallischem Vanadium schliessen lassen. Alle diese Aussagen benötigen natürlich noch detailliertere experimentelle Bestätigung.

Theoretisch lässt sich über die Volumenabhängigkeit von V noch nichts aussagen. Die Schwierigkeit liegt nicht so sehr in der ungenügenden Kenntnis der Matrixelemente $V_{kk'}$ als vielmehr in deren Mittelung über alle Zustände. Diese erfordert eine genauere Kenntnis der Fermifläche und vor allem eine exaktere Berücksichtigung der Umklapp-Prozesse, als dies PINES[6]) durchgeführt hat.

Man kann die Volumenabhängigkeit der kritischen Temperatur noch vergleichen mit deren Abhängigkeit von Legierungszusätzen. Leider wird die Interpretation dieser Resultate erschwert durch den Impurity-Effekt[7]). Bis heute lassen sich einzig über Zinn ungefähre Aussagen machen[7]). Es zeigt sich auch hier, dass die Änderung der kritischen Temperatur durch Legierungszusätze allein durch die Änderung der Elektronen-Zustandsdichte erklärt werden kann.

Diese Arbeit wurde aus einem Arbeitsbeschaffungskredit des Bundes finanziell unterstützt.

Literatur

[1]) J. BARDEEN, L. N. COOPER, J. R. SCHRIEFFER, Phys. Rev. *108*, 1175 (1957).
[2]) J. L. OLSEN, H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *30*, 49 (1957).
[3]) J. MÜLLER, H. ROHRER,, Helv. Phys. Acta *31*, 289 (1958).
[4]) W. BALTENSPERGER, Helv. Phys. Acta *31*, 292 (1958).
[5]) W. M. LOMER, W. MARSHALL, Phil. Mag. *3*, 185 (1958).
[6]) D. PINES, Phys. Rev. *109*, 280 (1958).
[7]) E. A. LYNTON, B. SERIN, M. ZUCKER, J. Phys. Chem. Solids **3**, 165 (1957).

Durchmesserabhängigkeit der magnetischen Widerstandsänderung in Indium

von J. L. OLSEN
(Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH. Zürich)

Wir haben Messungen des elektrischen Widerstandes von Indium sehr hoher Reinheit bei Temperatur des flüssigen Heliums durchgeführt.

Messungen an dünnen Proben ohne Magnetfeld zeigten eine Durchmesserabhängigkeit des Widerstandes, woraus eine freie Weglänge der

Elektronen von 1,25 mm in den reinsten Proben mit einem Restwiderstandverhältnis von $\varrho_0/\varrho_{290} = 1{,}7 \times 10^{-5}$ berechnet werden konnte. Daraus folgt $\sigma_0/l = 5{,}5 \times 10^{22}$ in Gaußschen Einheiten, wobei σ_0 die Leitfähigkeit für grosse Proben und l die freie Weglänge ist.

Es zeigten sich starke, durchmesserabhängige Abweichungen von der Matthiessenschen Regel. In Proben von 0,06 mm Durchmesser war der Widerstandsanstieg zwischen 0 K und 4,2 K zweimal so gross wie in den dicksten Proben. Anzeichen eines solchen Effektes sind schon in den Messungen von ANDREW[1]) an Zinn vorhanden, doch sind sie in Indium wegen der kleineren Debey-Temperatur viel ausgeprägter.

Für dicke Proben im transversalen Magnetfeld sind die Ergebnisse mit denen von FOROUD, JUSTI und KRAMER[2]) in Übereinstimmung bis zu

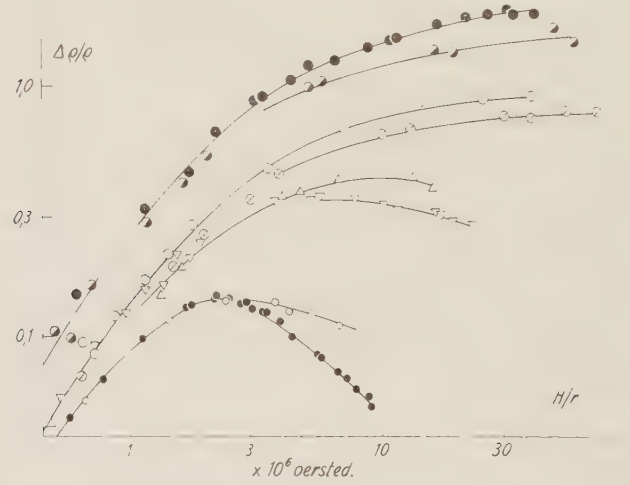


Fig. 1

Relative Widerstandsänderung $\Delta\varrho/\varrho$ von Indium-Proben verschiedener Durchmesser in Längs- und Querfeld in Funktion von H/r.

● 1,6 mm ⌀ Querfeld 4,2° K	◕ 1,6 mm ⌀ Querfeld 2° K
○ 1,6 mm ⌀ Längsfeld 4,2° K	⊘ 1,6 mm ⌀ Längsfeld 2° K
△ 0,3 mm ⌀ Längsfeld 4,2° K	▽ 0,3 mm ⌀ Längsfeld 2° K
◦ 0,06 mm ⌀ Längsfeld 4,2° K	• 0,06 mm ⌀ Längsfeld 2° K

den höchsten von diesen Autoren erreichten Werte von H/r (H ist das Magnetfeld und $r = \varrho_T/\varrho_\Theta$, wobei ϱ_T und ϱ_Θ die Widerstände bei der Messtemperatur T und bei der Debye-Temperatur θ sind). Bei einer weiteren Erhöhung von H/r um einen Faktor 5 sind keine Anzeichen eines Wiederanstieges des Widerstandes, wie es unter ähnlichen Bedingungen in Aluminium von LÜTHI und OLSEN[3]) beobachtet wurde, vorhanden.

Für dünne Proben im Magnetfeld fanden wir sowohl im Längs- wie im Querfeld Abweichungen von der Kohlerschen Regel, die durchmesser-

abhängig waren; diese sind in Fig. 1 erkennbar. Diese Abweichungen sind mit den von MacDonald[4]) und von Chambers[5]) in Natrium beobachteten «magnetoresistive size effects» verwandt und sind hier in Indium wegen der Sättigung der Widerstandsänderung leicht beobachtbar.

Aus einem Vergleich unserer Messungen im Längsfeld mit der Theorie von Chambers lässt sich ein Wert für $m\,\bar{v}$ ermitteln (wobei m die effektive Elektronenmasse und $\bar{v}$ die mittlere effektive Elektronengeschwindigkeit bedeuten). In Tabelle 1 zeigen wir die aus unseren Messungen an Indium und aus Chambers Messungen an Natrium erhaltenen Werte für σ_0/l und $m\,\bar{v}$. Diese werden mit den aus der Sommerfeld-Theorie für ein freies Elektron per Atom berechneten Werten verglichen. Dazu verwenden wir die Relationen:

$$\frac{\sigma_0}{l} = 2{,}1 \times 10^7\, n^{2/3} \quad \text{und} \quad m\,\bar{v} = \frac{1}{\hbar}\left(\frac{3\,n}{8\,\pi}\right)^{1/3}$$

wobei n die Zahl von freien Elektronen pro cm³ ist.

Tabelle 1

	$\sigma_0/l \times 10^{-22}$		$m\,\bar{v} \times 10^{20}$	
	exp.	theor.	exp.	theor.
Na	6,3	8,1	9,1	9,7
In	5,5	8	160	11

Man sieht, dass die experimentellen Werte für ϱ_0/l mit den theoretischen übereinstimmen, sowohl für Natrium wie auch für Indium. Bei $m\,\bar{v}$ dagegen ist dies nur für Natrium der Fall, während für Indium eine Diskrepanz um einen Faktor von ca. 15 besteht. Dies muss wohl auf eine Struktur der Fermi-Oberfläche deuten, wodurch die von Chambers angenommene Kreiselbewegung der Elektronen ausserordentlich erschwert wird.

Literatur

[1]) E. R. Andrew, Proc. Phys. Soc. A *62*, 77 (1949).
[2]) A. Foroud, E. Justi und J. Kramer, Phys. Zs. *41*, 113 (1940).
[3]) B. Lüthi und J. L. Olsen, Nuovo Cimento *3*, 840 (1956).
[4]) D. K. C. MacDonald, Nature *163*, 637 (1949).
[5]) R. G. Chambers, Proc. Roy. Soc. A *202*, 378 (1950).

Magnetische Suszeptibilität des flüssigen Ge

von G. Busch, H. J. Stocker und O. Vogt
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH., Zürich)

Die magnetische Suszeptibilität des Ge wurde nach der Gouy-Methode zwischen 4° und 1330° K, d. h. bis 120° über den Schmelzpunkt mit einer schon früher beschriebenen Messanordnung[1])[2]) gemessen. Die poly-

kristallinen n-Typ Ge-Proben haben einen spez. Widerstand von ca. 40 Ωcm bei Zimmertemperatur.

Der Temperaturverlauf der Suszeptibilität des Ge im festen Zustand bestätigt frühere Messungen[3)4]). Beim Schmelzpunkt zeigt die spezifische magnetische Suszeptibilität einen Sprung von $(-1{,}10 \pm 0{,}005) \cdot 10^{-7}$ auf $(+0{,}56 \pm 0{,}03) \cdot 10^{-7}$, d. h. flüssiges Ge ist paramagnetisch. In der Schmelze steigt die Suszeptibilität linear mit zunehmender Temperatur an, überraschenderweise mit der gleichen Steigung wie zwischen 100° K und 600° K (Tieftemperaturast)[3]).

Dieser Sprung der Suszeptibilität nach der paramagnetischen Seite deutet darauf hin, dass Ge beim Schmelzen vom Halbleiter zum Metall übergeht, in Übereinstimmung mit der Schlussfolgerung aus röntgenographischen Untersuchungen[5]), aus der anomal grossen Schmelzwärme des Ge sowie aus Messungen der elektrischen Leitfähigkeit[6)7]), Thermokraft[6]) und Dichte[7]). Der scharfe Knick des Temperaturverlaufes am Schmelzpunkt zeigt, dass dieser Halbleiter-Metall-Übergang, im Gegensatz zum Te[1]), bereits am Schmelzpunkt beendet ist, was ebenfalls aus der Messung der Thermokraft folgt. Ganz ähnlich verhalten sich die Suszeptibilitäten von InSb, Sb und Bi beim Schmelzen, sowie Sn bei der Umwandlung $\alpha \rightarrow \beta$-Modifikation[2]). Qualitativ kann dieser Sprung folgendermassen begründet werden:

a_1) Beim Schmelzen verschwindet der sogenannte «anomale Diamagnetismus», welcher durch die oft äusserst kleine effektive Masse m^* der «quasifreien» Ladungsträger im festen Zustand bedingt ist[3)8]).

a_2) In der Schmelze tritt eine grosse Anzahl von freien Elektronen mit ungefähr der wahren Elektronenmasse auf, welche nach Pauli und Landau einen paramagnetischen Beitrag[8]) liefern.

b_1) Durch die Entstehung von vielen freien Elektronen in der Schmelze wird die Anzahl von Valenzelektronen kleiner, dadurch vermindert sich nach der Larmor-Langevinschen Formel der diamagnetische Beitrag der Valenzelektronen[3]).

b_2) Durch unvollständige Ionisation der Valenzschalen könnte ein weiterer paramagnetischer Beitrag unabgesättigter Spins hervorgerufen werden.

Jeder dieser vier Anteile bewirkt einen Sprung der Suszeptibilität am Schmelzpunkt in paramagnetischer Richtung. Für Ge beträgt der Beitrag a_1): $(\Delta\chi)_{a1} = +0{,}3 \cdot 10^{-7}$. Nach Pauli und Landau ist der Beitrag[8]) a_2): $(\Delta\chi)_{a2} \sim n^{1/3}$, wo n die Konzentration der freien Elektronen im flüssigen Ge bedeutet. Der Beitrag b_1) fällt für Ge vermutlich nicht ins Gewicht, weil der entsprechende Larmor-Langevin-Term des festen Ge experimentell nicht gefunden wurde[3]). Ein grosser Beitrag von b_2) ist ebenfalls unwahrscheinlich, da infolge der grossen Wechselwirkung zwi-

schen den Valenzelektronen benachbarter Atome ihre Spins sich gegenseitig absättigen können.

Unter der Annahme, dass $(\Delta\chi)_{b1}$ und $(\Delta\chi)_{b2}$ gegenüber $(\Delta\chi)_{a2}$ vernachlässigt werden können, ergibt sich aus $(\Delta\chi)_{a2} \approx (\Delta\chi)_{exp.} - (\Delta\chi)_{a1} = +1{,}4 \cdot 10^{-7}$ eine Elektronenkonzentration n, welche ungefähr einem freien Elektron pro Ge-Atom entspricht. Dieser Wert stellt eine obere Grenze dar, weil $(\Delta\chi)_{b1}$ und $(\Delta\chi)_{b2}$ definit paramagnetisch sind.

Eine Interpretation des schwach linearen Anstiegs des Temperaturverlaufes der Suszeptibilität in der Schmelze scheint uns verfrüht. Wegen der auffallenden Übereinstimmung der Steigung mit derjenigen des Tieftemperaturastes ist es nicht ausgeschlossen, dass ein Zusammenhang zwischen diesen beiden besteht.

Literatur

[1]) G. Busch und O. Vogt, Helv. Phys. Acta *27*, 241 (1954); *30*, 224 (1957).
[2]) G. Busch und E. Mooser, Helv. Phys. Acta *26*, 611 (1953).
[3]) G. Busch, Halbleiterprobleme IV (1958), herausgegeben von W. Schottky.
[4]) A. van Itterbeek und W. Duchateau, Physica *22*, 649 (1956).
[5]) H. Hendus, Z. Naturforschg. *2a*, 505 (1947).
[6]) C. A. Domenicali, J. app. Phys. *28*, 749 (1957).
[7]) N. P. Makrowskij und A. R. Regel, Zh. Tekh. Fiz. *22*, 1281 (1952).
[8]) Siehe z. B. A. H. Wilson: «The Theory of Metals», p. 168 (1954).

Die magnetische Suszeptibilität von Si-GeMischkristallen

von G. Busch, H. J. Stocker und O. Vogt
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH. Zürich)

Im Anschluss an unsere früheren Arbeiten[1]) an Si und Ge haben wir die magnetische Suszeptibilität einer Reihe von Si-Ge-Mischkristallen von 80° K bis ca. 1200° K gemessen.

Die polykristallinen Proben wurden je nach dem Konzentrationsverhältnis nach drei Verfahren hergestellt. Für Si-Konzentration zwischen 100 und 80 Gew.% wurde das «Floating-Zone-Verfahren» angewandt. Unterhalb 80% Si ist dieses Verfahren wegen des zu grossen Gewichts der flüssigen Zone unbrauchbar. Wir haben eine neue *tiegelfreie* Methode, das «Anblasverfahren», entwickelt, welches die Herstellung von Mischkristallen mit Si-Konzentration zwischen 80 und 50 Gew.% erlaubt. Bei diesem Verfahren wird ein Gemisch von Si- und Ge-Pulver aus einer Quarzglasdüse auf einen flüssigen Tropfen am Ende eines Keim-Stabes angeblasen. Durch langsames Heraufziehen dieses Stabes aus der Hochfrequenz-Heizspule entstehen Mischkristalle bis ca. 10 mm Durchmesser mit prinzipiell unbeschränkter Länge. Für Si-Konzentrationen unterhalb

50% wurde das konventionelle «Zone-Levelling-Verfahren» benützt. Die spezifischen Widerstandswerte solcher Proben liegen bei Zimmertemperatur zwischen 2 und 400 Ωcm.

Nach früheren Messungen[1]) nimmt die magnetische Suszeptibilität χ für Si zwischen 300 und 1300 K mit zunehmender Temperatur *linear* zu; während die Suszeptibilität für Ge ein *Maximum* bei 800° K durchläuft. Die neuen Messresultate für Si-Ge-Mischkristalle zeigen einen stetigen Übergang von dem Kurvenverlauf des Ge zu demjenigen des Si. Für Proben mit Si-Konzentration unterhalb 18 At.% zeigen die χ-T-Kurven noch ein Maximum, welches sich mit zunehmender Si-Konzentration ständig nach höherer Temperatur verschiebt; bei 18 At.% Si liegt dieses Maximum praktisch am Schmelzpunkt. Mit weiter zunehmender Si-Konzentration weichen die χ-T-Kurven immer weniger von einem linearen Verlauf ab, von 60 At.% Si aufwärts sind sie bis 1300° K linear.

Nach Busch[1])[2]) und Mooser[2]) und Enz[3]) setzt sich die magnetische Suszeptibilität χ für eigenleitende Halbleiter wie reines Ge und Si im wesentlichen aus einem Gitteranteil χ_G und einem von den quasifreien Ladungsträgern herrührenden Anteil χ_L zusammen:

$$\chi = \chi_G + \chi_L \tag{1}$$

Für Nichtentartung gilt:

$$\chi_L = A(m^*) \cdot T^{1/2} \cdot e^{-\frac{\Delta E}{2kT}} \tag{2}$$

wo ΔE die Aktivierungsenergie und $A(m^*)$ eine monoton abnehmende Funktion der effektiven Masse m^* bedeuten. Somit wird χ_L gross für kleine ΔE bzw. kleine m^* und umgekehrt. Mit bekannten Werten für ΔE und m^* hat Enz[3]) die experimentellen Resultate für Ge quantitativ erklären können. Die analoge Berechnung für Si zeigt, dass bis 1300° K χ_L so klein bleibt, dass der experimentell bestimmte Temperaturverlauf von χ im wesentlichen denjenigen von χ_G bedeutet.

Die Messungen für Si-Ge-Mischkristalle stellen eine ständige Abnahme vom χ_L-Anteil mit zunehmender Si-Konzentration fest, was nach (2) eine entsprechende Zunahme von ΔE bzw. $A(m^*)$ bedeutet. Eine quantitative Analyse, insbesondere die Berechnung von $A(m^*)$, wird Gegenstand einer späteren Arbeit sein.

Literatur

[1]) G. Busch, Halbleiterprobleme IV (1958), herausgegeben von W. Schottky.
[2]) G. Busch und E. Mooser, Helv. Phys. Acta *26*, 611 (1953).
[3]) Ch. Enz, Helv. Phys. Acta *28*, 158 (1955).

Halbleitende Verbindungen mit Übergangselementen

von G. Busch und F. Hulliger
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH., Zürich)

Die meisten der natürlich vorkommenden Mineralien sind Nichtmetalle. Obwohl es darunter fast ebensoviele Verbindungen mit Übergangselementen gibt wie solche ohne Übergangselemente, ist über Halbleiter aus dieser Verbindungsgruppe sehr wenig bekannt. Den Hauptgrund bilden wohl die Schwierigkeiten bei der Reindarstellung, woran direkt oder indirekt die zusätzlich an der Bindung beteiligten *d*-Elektronen schuld sind.

Von den Verbindungen der Übergangselemente waren hauptsächlich nur die Oxyde als Halbleiter bekannt. Ausserdem liessen sich diese Verbindungen scheinbar nicht erklären durch die Zonen- oder Bändertheorie, welche für verschiedene Oxyde metallische Eigenschaften voraussagte. Diese Unstimmigkeiten lassen sich aber beheben.

Zur Beurteilung des Leitungscharakters einer Verbindung stehen zwei Wege offen:

1. Berechnung der Auffüllung der Brillouinzone (Betrachtung der Fernordnung).

2. Diskussion der chemischen Bindung zwischen den einzelnen Atomen (Betrachtung der Nahordnung).

Beide Methoden müssen natürlich zum selben Resultat führen.

Vollständige Absättigung der Valenzelektronen, d. h. Besetzung aller energetisch gleichwertigen Bindungsbahnen, ist nun gleichbedeutend mit vollständiger Auffüllung der Brillouinzone. Wie bei der Spinabsättigung wirken aber auch bei der Auffüllung der Brillouinzone oder des Valenzbandes nur die bindenden Elektronen mit. Die nichtbindenden *d*-Elektronen müssen bei nichtmetallischen Verbindungen von den Bindungselektronen energetisch getrennt sein. Sie besetzen entweder diskrete Niveaux oder ein schmales Energieband und tragen nicht zur Leitfähigkeit bei.

Das Problem besteht nun in der Feststellung der bindenden und nichtbindenden *d*-Elektronen. Bei Halbleitern sind die Verhältnisse durchsichtiger als bei metallischen Verbindungen, da nur ganzzahlige Besetzungszahlen vorkommen.

Aus der Lage der Nachbaratome ergeben sich die in Frage kommenden Bindungsfunktionen und damit die möglichen Elektronenkonfigurationen der *d*-Schale. Die dadurch festgelegte Magnetonenzahl muss sich natürlich durch Suszeptibilitätsmessungen bestätigen lassen.

Allein durch Brillouinzonenberechnung und magnetische Messungen lässt sich der Leitungscharakter voraussagen bei Verbindungen, in welchen die Aufspaltung der *d*-Schale nicht in Erscheinung tritt (Ionenver-

bindungen oder solche ohne doppelt besetzte d-Niveaux). Als Beispiel wählen wir Verbindungen von Ti bis Fe vom Typ NiAs und MnP. Die Anionen bilden eine hexagonale Packung, in deren Oktaederlücken die Kationen sitzen. Für die ideale hexagonale Packung mit $c/a = 1{,}633$ existiert eine Brillouinzone, die genau 8 Elektronen pro Anion aufnehmen kann. Wir erwarten deshalb für NiAs-Verbindungen mit $c/a \geq 1{,}6$ und MnP-Verbindungen mit geringen Verzerrungen Halbleitercharakter und entsprechende magnetische Momente. Über CrS, MnTe und FeS finden sich Angaben in der Literatur, von CrSe, FeSe, CrAs und FeAs wurde der Halbleitercharakter durch eigene Messungen bestätigt.

Eine Verbindungsgruppe, die man hingegen nicht versteht ohne Betrachtung der Bindungen, bilden die Pyrit- und Markasitverbindungen. Die Metallatome sind oktaedrisch von sechs Anionen umgeben, während diese tetraedrisch von drei Kationen und einem Anion umgeben sind. Ausser Ionenbindung kommen für die Anionen sp^3-Funktionen und für die Kationen d^2sp^3- oder sp^3d^2-Funktionen als Bindungshybriden in Frage. Auf Grund dieser Bindungen erwarten wir bei allen Verbindungen Halbleitereigenschaften. Über MnS_2, $MnSe_2$, FeS_2, $CrSb_2$ und $CoSb_2$ findet man Literaturdaten, welche den Halbleitercharakter bestätigen; durch eigene Messungen wurde bei $MnTe_2$, $FeSe_2$, $FeTe_2$, FeAsS, $FeAs_2$, $FeSb_2$, CoAsS, $CoAs_2$ und NiS_2 Halbleitung nachgewiesen.

Es ist auffallend, dass die in der Natur am häufigsten vorkommenden Verbindungen entweder abgesättigte Spins aufweisen (wie der Pyrit FeS_2, der Kobaltglanz CoAsS und der Rammelsbergit $NiAs_2$) oder dann (wie der Hauerit MnS_2) halbvolle d-Schalen besitzen, deren magnetische Momente bei tiefen Temperaturen durch antiferromagnetische Kopplung kompensiert werden. Auch die übrigen Verbindungen mit nichtverschwindendem Moment werden wohl alle Antiferromagnetismus zeigen, ausser CoS_2, das unterhalb 110° K ferromagnetisch wird. Die Sättigungsmagnetisierung von CoS_2 ergibt grob ein Magneton, in Übereinstimmung mit dem paramagnetischen Wert. Vorläufige Leitfähigkeitsmessungen an gepresstem Pulver deuten auf die Möglichkeiten der Existenz eines ferromagnetischen Halbleiters hin.

Die Atom- und Elektronenwärme des Urans zwischen 10° K und Zimmertemperatur

von K. Clusius und U. Piesbergen
(Physikalisch-Chemisches Institut der Universität Zürich)

Durch das Entgegenkommen der SKA wurde uns ein Uranzylinder im Gewicht von 1 kg zur Verfügung gestellt, um die Atomwärme zwischen 10° K und Zimmertemperatur zu messen. Bis 11° K geschah die

Abkühlung durch flüssigen und festen Wasserstoff, von da an durch Expansion von Helium, das auf 150 Atü komprimiert war. Zur Temperaturmessung diente ein 70 μ dicker Bleidraht von mehreren Metern Länge, der beim Sprungpunkt sowie bei 20° und 80° K mit Dampfdruckthermometern geeicht war. Die Umrechnung von C_p auf C_v erfolgte mit der Beziehung $C_p - C_v = 2{,}08 \cdot 10^{-5}\, C_p^2\, T$.

Unterhalb von 18° K liegen die Messwerte in einem C_v/T, T^2-Diagramm auf einer Geraden. Dies bedeutet, dass hier die Zerlegung der Atomwärme in einen dem T^3-Gesetz folgenden Gitteranteil und eine linear mit T ansteigende Elektronenwärme möglich ist:

$$C_v = 464{,}5 \left(\frac{T^3}{\Theta^3}\right) + \gamma T = 464{,}5 \left(\frac{T^3}{170^3}\right) + 21 \cdot 10^{-4}\, T$$

Oberhalb von 100° K sinken die Debijeschen θ-Werte rasch auf null ab. Doch lässt sich auch in diesem Temperaturgebiet mit einem bei 185° liegenden θ-Wert die Atomwärme des Urans gut wiedergeben, wenn eine Elektronenwärme von $20{,}7 \cdot 10^{-4}\, T$ in Rechnung gestellt wird. Dieses Verhalten entspricht ganz dem anderer Übergangselemente, die in letzter Zeit in unserem Laboratorium untersucht worden sind[1–4]).

Literatur

[1]) K. Clusius und C. G. Losa, Rhodium und Iridium, Z. f. Naturforschung *10a*, 545 (1955).

[2]) K. Clusius und H. H. Bühler, Verschiedene Metalle, Z. f. Naturforschung *10a*, 930 (1955).

[3]) K. Clusius und C. G. Losa, Tantal, Z. f. Naturforschung *10a*,, 939 (1955).

[4]) K. Clusius, C. G. Losa und P. Franzosini, Platin, Z. f. Naturforschung *12a*, 34 (1957).

Messung der Energieverluste sehr langsamer Elektronen in Alkalimetallen mit Hilfe des äusseren lichtelektrischen Effektes

von S. Methfessel
(Physikalisches Institut der Bergakademie Clausthal, jetzt IBM.-Forschungslaboratorium, Zürich)

Von H. Mayer und H. Thomas[1]) wurde an Kaliumschichten, die im Höchstvakuum von 10^{-9} Torr auf eine auf 90° K gekühlte Glas- oder Quarzfläche gedampft wurden, die Veränderlichkeit des Photostromes und der Quantenausbeute des äusseren lichtelektrischen Effektes mit der Schichtdicke, beginnend bei wenigen Atomlagen, gemessen. Das Ergebnis dieser Untersuchungen sowie der vom Verfasser durchgeführten Messungen der Energieverteilungen der Photoelektronen aus dünnen, unter saubersten Bedingungen aufgedampften Kalium- und Caesiumschichten[2])

zeigen eindeutig, dass der äussere lichtelektrische Effekt der Alkalimetalle im sichtbaren Spektralbereich über λ 265 mμ, entgegen bisheriger Annahmen, ein überwiegender Volumeneffekt ist, bei dem die zur Photoemission führende Lichtabsorbtion mit einer Braggschen Reflexion der absorbierenden Elektronen am Ionengitter des Metalles verknüpft ist.

Die bei einem Volumeneffekt im Metallinneren angeregten Photoelektronen müssen vor ihrem Austritt aus der Oberfläche das Metall durchlaufen, so dass sich die Möglichkeit ergibt, mit Hilfe des lichtelektrischen Effektes die Energieverluste zu untersuchen, die sehr langsame Elektronen innerhalb eines Metalles erleiden und die im wesentlichen durch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung verursacht werden.

Die Energieabhängigkeit dieser Wechselwirkung kann man bestimmen, indem man zunächst aus der Theorie des Volumeneffektes[1]) die Energieverteilung der bei Einstrahlung verschiedener Lichtwellenlängen austretenden Photoelektronen ohne Berücksichtigung irgendwelcher Wechselwirkungen berechnet. Die bei den experimentell bestimmten Kurven auftretenden Abweichungen lassen sich dann auf den Einfluss der Elektron-Elektron-Wechselwirkung zurückführen. Überdies kann man einen experimentellen Mittelwert erhalten von der freien Weglänge, die ein angeregtes Elektron innerhalb des Metalles zurücklegen kann, bis seine Energie auf das restliche Elektronengas übergegangen ist, indem man die Abhängigkeit der experimentellen Energieverteilungskurven von der Schichtdicke der bestrahlten Metallprobe untersucht.

Die in Fig. 1 mitgeteilten Ergebnisse der mit der Methode des sphärischen Gegenfeldes an Caesium-, Kalium- und Natriumschichten, die mit dem monochromatischen Licht der Hg-Linien bestrahlt wurden, durchgeführten Energieverteilungsmessungen zeigen, dass grundsätzlich zwei Arten der hier wirksamen Wechselwirkungen zu unterscheiden sind[1,2]):

1. Eine kollektive Wechselwirkung der angeregten Elektronen mit der Gesamtheit des unangeregten Elektronengases, das nach Bohm und Pines[3]) zusammen mit den Ionen des Metallgitters als schwingungsfähiges Plasma aufzufassen ist, dessen Eigenfrequenz durch die Dichte der freien Elektronen bestimmt wird.

Sobald die Energie eines angeregten Elektrons die Eigenschwingungsenergie des Plasmas erreicht, setzt durch Anregung der Plasmaschwingung eine sehr starke Wechselwirkung ein, die eine freie Weglänge über nur etwa vier Atomabstände hin zulässt.

Die berechneten Plasmaeigenschwingungsenergien sind bei Caesium 2,88 eV, bei Kalium 3,65 eV und bei Natrium 5,90 eV. Elektronen, deren Energie im Metall zur Anregung von Plasmaschwingungen ausreicht, erscheinen dann im Vakuum mit einer Energie, die über dem in

Fig. 1 mit E_p bezeichneten Wert liegt. Bei Kalium und Caesium, bei denen dieser Wert innerhalb des untersuchten Spektralbereiches liegt, markiert sich das Einsetzen dieser Wechselwirkung in den experimen-

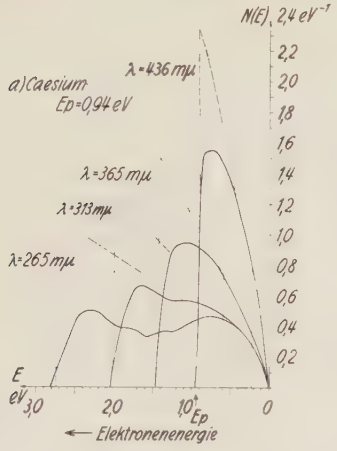


Fig. 1a

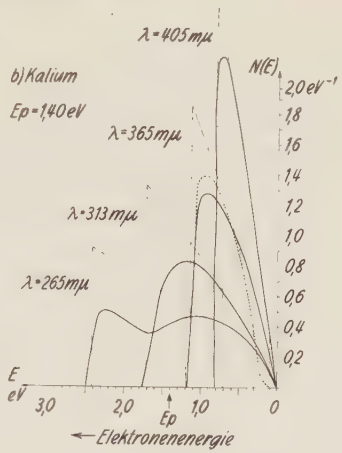


Fig. 1b

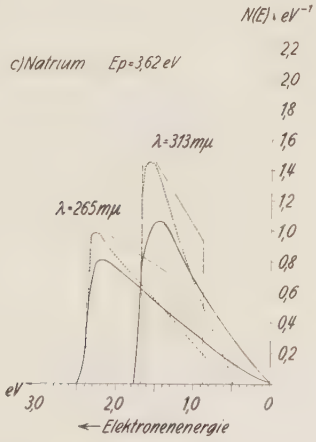


Fig. 1c

Mit verschiedenen Hg-Spektrallinien erhaltene Energieverteilungen des Caesium (*a*), Kalium (*b*) und Natrium (*c*). —— grosse Schichtdicke, ····· 5 Atomlagen dicke Schicht, – – – – theoretisch berechnet. E_p = die zur Anregung von Plasmaschwingungen ausreichende Elektronenenergie.

tellen Kurven durch eine charakteristische Einsattelung bei E_p. Die Unveränderlichkeit der über E_p liegenden Kurven mit der Schichtdicke, bis zu 5 Atomlagen herunter folgt aus der sehr kurzen freien Weglänge bei kollektiver Wechselwirkung.

*

2. Eine individuelle Wechselwirkung einzelner durch ihre Debyekugeln abgeschirmter Elektronen untereinander, die wesentlich schwächer ist und daher über E_p von der ersten Art völlig überdeckt wird. Die etwa 80 Atomabstände betragende freie Weglänge dieser Wechselwirkung zeigt sich beim Kalium mit $\lambda = 365$ mμ in der guten Übereinstimmung der bei 5 Atomlagen dicker Schicht gemessenen Verteilung mit der Theorie, weil sich bei den dann im Metall möglichen Elektronenwegen die Wechselwirkung nicht mehr bemerkbar macht. Beim Natrium ist die bei den 5 Atomlagen dicken Schichten zu erwartende Übereinstimmung zwischen theoretischen und experimentellen Kurven nicht so gut, weil besondere beim Natrium zu vermutende Anregungsverhältnisse der Photoelektronen nicht in der Rechnung enthalten sind. Erst bei etwa 100 Atomlagen werden bei Kalium für $\lambda = 365$ mμ und bei Natrium im ganzen untersuchten Energiebereich die Verteilungskurven dickenunabhängig, was mit den bei der individuellen Wechselwirkung zu erwartenden grossen freien Weglänge gut übereinstimmt.

Bemerkenswert ist, dass beim Kalium und besonders beim Caesium die Energieverteilungskurven für $\lambda = 313$ und $\lambda = 265$ mμ im Bereich kleiner Energien völlig zusammenfallen, also von der lichtelektrischen Anregung unabhängig werden. Da in diesem Energiebereich nach Ausweis der theoretischen Kurven bei einem Volumeneffekt keine Elektronen angeregt werden, ergibt sich die Folgerung, dass es sich hier um eine Sekundäremission mit den schnellen Photoelektronen als Primärelektronen handelt. Dies wird bestätigt durch die gute Übereinstimmung der lichtelektrischen Verteilungen unterhalb etwa 0,5 eV beim Caesium mit den von KOLLATH[4]) bei ca. 100 eV Primärenergien gemessenen Energieverteilungen der echten Sekundärelektronen aus dem Caesium.

Literatur

[1]) H. THOMAS, ZS. Physik *147*, 395–418 (1957); H. MAYER, H. TOMAS, ZS. Physik *147*, 419–441 (1957).
[2]) S. METHFESSEL, ZS. Physik *147*, 442–464 (1957).
[3]) D. BOHM, D. PINES, Phys. Rev. *82*, 625 (1951); Phys. Rev. *92*, 609 (1953); D. PINES, D. BOHM, Phys. Rev. *85*, 338 (1952); Phys. Rev. *92*, 629 (1953).
[4]) R. Kollath, Ann. Phys. (6) *1*, 357 (1947).

Growth of Ferroelectric Crystals of the Type $(Glycine)_3H_2AB_4$

by R. NITSCHE (Laboratories RCA Ltd, Zürich)

The isomorphous salts triglycine sulfate, selenate[1]) and fluoberyllate[2]) are ferroelectric and have Curie temperatures of 50, 28 and 70° C.

The compounds were synthesized as follows:

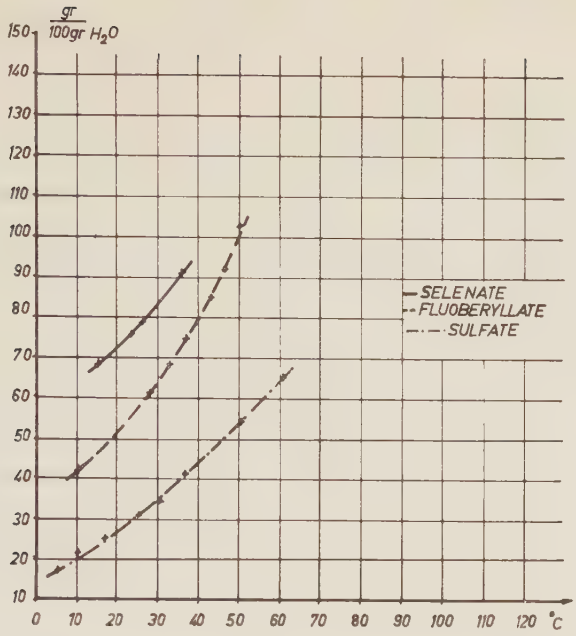

gr / 100gr H_2O
150
140
130
120
110
100
90
80
70
60
50
40
30
20
10
0 10 20 30 40 50 60 70 80 90 100 110 120 °C
SELENATE
FLUOBERYLLATE
SULFATE

Fig. 1

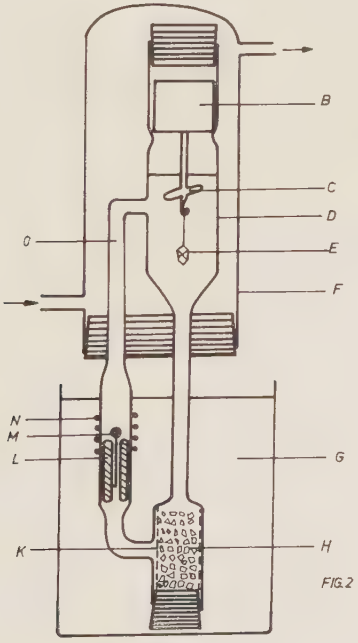

B
C
D
E
F
G
H
K
L
M
N
O
FIG.2

Fig. 2

1. The sulfate (selenate) was obtained by reacting an aqueous glycine solution with the corresponding amount of sulfuric (selenic) acid and precipitation of the salt by adding methanol to the solution:

$$3 \cdot NH_2CH_2COOH + H_2SO_4 = (NH_2CH_2COOH)_3 \cdot H_2SO_4$$

2. The fluoberyllate was made according to:

a) $BeCO_3 + 4\,HF = CO_2 + H_2O + H_2\,BeF_4$

b) Addition of an equivalent amount of glycine:

$$3\,NH_2CH_2COOH + H_2BeF_4 = (NH_2CH_2\,COOH)_3 \cdot H_2BeF_4$$

c) Precipitation of the salt by methanol addition.

The compounds crystallize monoclinic, space group $P\,2_1$ [3], the ferroelectric axis being the b axis. To find optimal crystallization conditions the solubilities in water were measured as a function of temperature (Fig. 1). The solubility values were obtained by agitating sealed ampoules containing weighed amounts of salt and water in a bath of slowly rising temperature and observing the temperature of dissolution. The conventional methods to grow single crystals (growth by solvent evaporation at constant temperature and growth by slowly lowering the temperature at constant supersaturation) yielded only relatively small, irregular crystals due to local concentration gradients in the solution. Furthermore long growing times were required. To overcome these difficulties the crystal growing apparatus shown in figure 2 was constructed. It is a modified Nacken [4]) arrangement in which the salt solution is permanently circulated between a reservoir H, containing polycrystalline feed material and the crystallization chamber D. Since $T_H > T_D$ the solution entering D is supersaturated and the seed E can grow. T_H and T_D are maintained by thermostats within some hundredths of a degree. To ensure uniform concentration in D a stirrer C, driven by a motor B agitates the solution. Unwanted seeds originating in D fall down into the reservoir H and are reused. A nylon net K prevents crystallites from rising into D. Circulation is effected by a magnetic pump. It consists of a piston L, made from a glass coated hollow iron cylinder. The bore of the piston is closed by a glass valve M. The piston is lifted in regular intervals by magnetic pulses generated in the coil N. A relatively fast growth was achieved by this method. Optically clear crystals of $2 \cdot 2 \cdot 2\ cm^3$ could be grown within 48 hours, the size being limited by the dimensions of the vessel. By varying the difference $\Delta T = T_H - T_D$ the velocity of growth could be varied in wide limits.

Rejerences

[1]) R. T. Matthias, C. E. Miller, J. P. Remeika, Phys. Rev. *104*, 849 (1956).
[2]) R. Pepinsky, Y. Okaya, F. Jona, Bull. Am. Phys. Soc. II, Vol. 2, 220 (1957).
[3]) E. A. Wood, A. N. Holden, Acta Cryst. *10*, 145 (1957).
[4]) R. Nacken, Z. Instrumentenkunde *36*, 12–20 (1916).

Some Physical Properties of Tri Glycine Sulfate and its Isomorphs

by E. Fatuzzo (Laboratories RCA Ltd, Zürich)

Tri Glycine Sulfate (TGS) and its isomorphs Tri Glycine Selenate (TGSe) and Tri Glycine Fluoberyllate (TGF) are known to be ferroelectric[1])[2]). For TGS we measured at the Curiepoint of 50° C values of the dielectric constant up to 9500. The spontaneous polarization at room temperature is 2.2 μCoul/cm^2 and it decreases with increasing temperature but does not show any sudden jump at the Curiepoint. The plot of the reciprocal dielectric constant versus temperature below and above the Curiepoint gives two straight lines with a slope ratio of -2 to -2.5 depending on the sample. These observations lead to the conclusion that TGS shows a second order transition at the Curiepoint. This is substantiated by the fact that no double loops have been observed.

TGF with a Curiepoint of 70° C behaves very similar like TGS. The spontaneous polarization for this substance at room temperature is however somewhat larger.

Careful pulsing experiments have been performed on TGS. For fields E up to about 3000 V/cm the switching current i_s increases with the field according to an exponential law of the form

$$i_s = i_o \, e^{-\alpha/E} \tag{1}$$

where i_0 and the "activation field" α are constants (Fig. 1). This law has been verified over 4 decades similar to $BaTiO_3$ where this law was observed first[3]). The switching time t_s also follows an exponential law of the form

$$t_s = t_o \, e^{+\alpha'/E} \tag{2}$$

However t_s does not vary with field as fast as i_s does because the switched charge Q_s varies also with field E; it increases steeply for low fields and reaches saturation at about 2000-3000 V/cm. At higher fields there is a point where the switching mechanism seems to change, because equations (1) and (2) do not describe the behavior of switching current and time any more. At these higher fields we find a linear behavior of i_s and $1/t_s$ with E. (Fig. 1.)

This then leads to the assumption that at low fieldstrengths the switching is primarily determined by a nucleation mechanism whereas at higher field strengths the domain wall motion becomes of importance too. This is substantiated by the following observations. A change of the pulse sequence and pulse pattern does not influence the linear part but causes appreciable changes of the exponential part (Fig. 2), where T is the waiting time between two opposite pulses. This can be understood

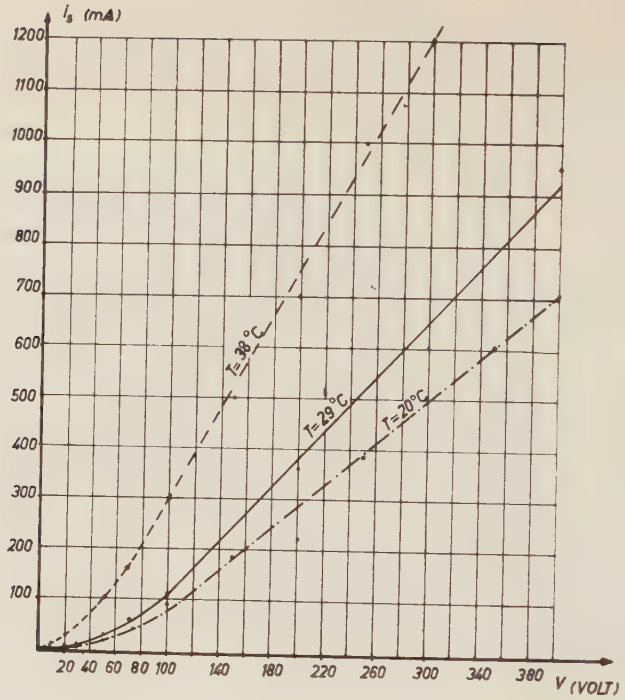

I_s (mA)
1200
1100
1000
900
800
700
600
500
400
300
200
100
T=38°C
T=29°C
T=20°C
20 40 60 80 100 140 180 220 260 300 340 380 V (VOLT)

Fig. 1

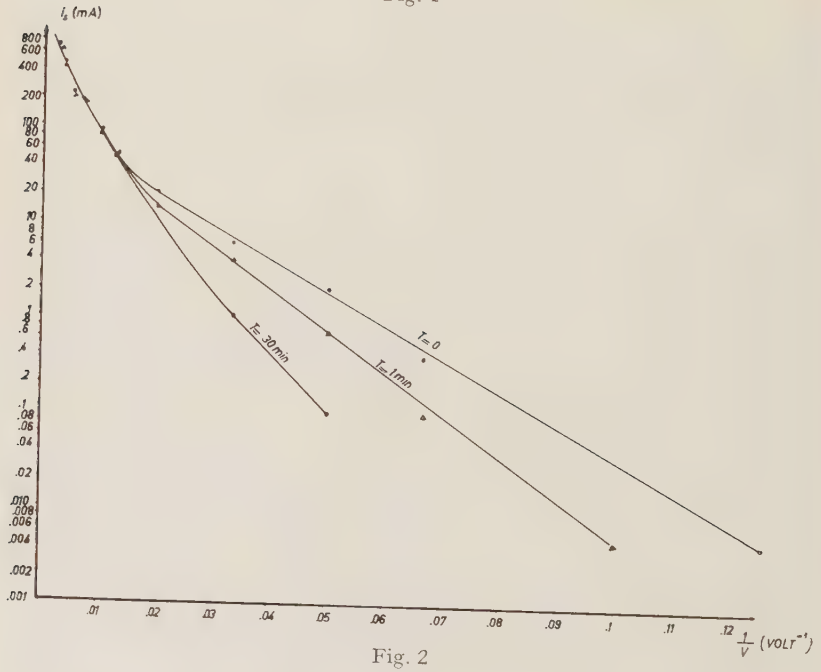

I_s (mA)
800
600
400
200
100
80
60
40
20
10
8
6
4
2
1
.8
.6
.4
.2
.1
.08
.06
.04
.02
.010
.008
.006
.004
.002
.001
T= 30min
T= 1min
T= 0
.01 .02 .03 .04 .05 .06 .07 .08 .09 .1 .11 .12 $\frac{1}{V}$ (VOLT^{-1})

Fig. 2

if one assumes that the domain size and therefore the activation field show a continuous variation during the time between one pulse and the next one. Studies made on the BARKHAUSEN noise on TGS as a function of pulse sequence and pulse pattern seem to support these assumptions.

The "switching resistance" in TGS at high field strengths is of the order of 300–1000 Ω. It decreases with decreasing thickness of the sample.

Preliminary switching experiments on TGF have shown a very pronounced exponential part in the switching current and time. No linear part has been found yet up to 20 000 V/cm.

References

[1]) B. T. MATTHIAS, J. P. REMEIKA, Phys. Rev. *104*, 849, (1956).
[2]) S. HOSHINO, T. MITSUI, F. JONA, R. PEPINSKY, Phys. Rev. *107*, 1255 (1957).
[3]) W. J. MERZ, Phys. Rev. *95*, 690 (1954).

Space-Charge-Limited Currents in ZnS Single Crystals

by W. RUPPEL (Laboratories RCA Ltd., Zürich)

Although large ZnS single crystals are highly insulating in the dark, large currents can be drawn through thin plates. The observations to be reported suggest that these currents are space-charge-limited (SCL) and analogous to those which have been observed by SMITH and ROSE[1]) in CdS single crystals.

The plates are about 5×10^{-3} cm thick. Ohmic contacts are achieved by Ga-contacts tempered at 700° C for 30 sec[2]) and they are still maintained when the Ga is removed either mechanically or chemically by etching with NaOH after tempering and In-contacts are pressed onto the crystal.

Experimental results

a) *dc-current-voltage characteristic*. A typical I-V-characteristic is shown in Fig. 1. Although the characteristics vary slightly from sample to sample, it consists of three distinct parts:

1. At low voltage (field $< 10^4$ volts/cm) I is linear in V.

2. At fields of about 10^4 volts/cm the current increases steeply. In some samples the log I vs. log V curves are almost vertical over more than five powers of ten in current.

3. At fields $> 10^4$ volts/cm the current increases with V^2. In Fig. 1 the current is plotted for increasing and decreasing voltage showing the good reproducibility of the results.

b) *Transient currents.* Transient currents exceeding the steady state value are observed when a field (*dc* or *ac*) is applied without exposing the crystal to light before application of the field. The transient currents decay in about 10^{-1} sec. After the field has been switched off, it is necessary to store the sample for hours in the dark to observe the transient current anew.

c) *Direct space charge detection.* The space charge accumulated in the crystal was measured with In-contacts and by dropping the crystal onto

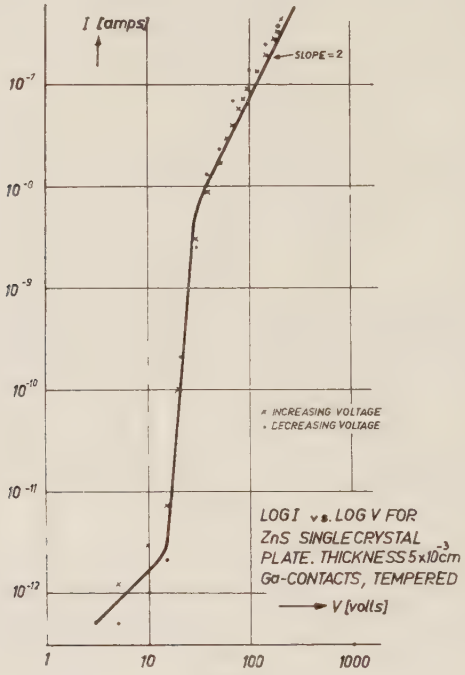


Fig. 1

the pan of an electrometer. In any case, whether an *ac* or *dc* field was applied and with the negative or positive electrode on ground, negative charge was detected. The magnitude of the charge was that of a condensor charge taking the geometry of the crystal. The effective contact area is closely that of the In-contact.

Discussion

The *I-V*-characteristic looks like a direct illustration of the theory of LAMPERT[3]) while it is hard to reconcile it with the concept of field-induced pre-breakdown developed by BÖER and coworkers[4]) for CdS. If the three parts of the curve are interpreted as ohmic, traps-filled-limit and free carrier SCL, the following quantitative data turn out:

1. From the ohmic part a resistivity of 10^{13} ohm.cms. and a thermal equilibrium free carrier concentration of $10^4/cm^3$ are obtained.

2. The onset of the vertical part corresponds to a trap density (deep traps) of $2\times10^{13}/cm^3$.

3. The absolute magnitude of the free carrier SCL-current in the V^2-region is by six powers of ten lower than one would expect if one takes the Hall mobility for the effective mobility. Shallow trapping is assumed to account for the reduction in current.

Since no optical excitation has preceeded the transient excess current, the latter cannot be due to emptying of traps by the field. The transient current is supposed to be due to injected excess free carriers which have not yet recombined with deep traps. Since the transient current decays only in 10^{-1} sec it is suggested that most of the electrons fall first into shallow traps from where they recombine with deep centers via the conduction band. With the ratio of free electrons to those in shallow traps of 10^{-6} the recombination life time becomes 10^{-7} sec.

The relaxation time of the space charge after the field is taken off is given by an expression of the form $\tau = 1/\nu\, e^{\Delta E_f/kT}$. If the recombination centers are assumed to lie at the Fermi level ($\Delta E_f = 0.85$ eV for the sample of Fig. 1) and if the effective lattice frequency ν is in the order of 10^{10} sec^{-1} τ becomes 10^5 sec, i.e. about one day. A slight variation of ΔE_f from sample to sample explains the wide range observed for τ.

The experimental results are analogous to those obtained for CdS and follow the theoretical predictions of Rose[5]) and Lampert[3]). One significant difference between the experimental results for CdS and ZnS is the observation of a pronounced V^2-dependent current region for ZnS with steady state *dc* voltage in the dark. A second difference is the long decay time of the transient excess current in ZnS. Both differences can be accounted for by the assumption of a high shallow trap concentration in ZnS. Due to a low shallow trap concentration in CdS the steady-state V^2-current region may not be observable since breakdown occurs before it sets in. The decay time of the transient SCL-current in CdS is directly given by the recombination life time of the free electrons while in ZnS the reduction of the free electron concentration by shallow trapping causes the observed increase in decay time.

References

[1]) R. W. Smith and A. Rose, Phys. Rev. *97*, 1531 (1955).
[2]) G. F. Alfrey and I. Cooke, Proc. Phys. Soc. B *70*, 1096 (1957).
[3]) M. A. Lampert, Phys. Rev. *103*, 1648 (1956).
[4]) K. W. Böer and U. Kümmel, Ann. d. Phys. *14*, 341 (1954).
[5]) A. Rose, Phys. Rev. *97*, 1538 (1955).

Wechselwirkungen von K⁻-Mesonen

von Y. Eisenberg, W. Koch, E. Lohrmann, M. Nikolić, M. Schneeberger und H. Winzeler
(Physikalisches Institut der Universität Bern)

Zusammenfassung. Untersucht wurden 415 Wechselwirkungen im Fluge von negativen K-Mesonen mit komplexen Kernen in Kernemulsionen. Wir vergleichen die Ergebnisse mit den Resultaten von Alvarez *et al.* für die Absorption von negativen K-Mesonen in Ruhe mit freien Protonen. Wir finden eine bedeutend höhere Λ-Produktion durch die Reaktion

$$K^- + N \rightarrow \Lambda + \pi$$

für unsere Wechselwirkungen im Fluge (mittlere kinetische Energie der K-Mesonen 86 MeV), als man erwartet, falls man die Ergebnisse von Alvarez auf komplexe Kerne überträgt.

Die vollständige Arbeit erscheint demnächst teils in «Nuovo Cimento», teils in HPA.

Analyse de désintégration de mésons K négatifs

par Y. Eisenberg, W. Koch, E. Lohrmann, M. Nikolić, M. Schneeberger et H. Winzeler
(Institut de Physique de l'Université de Berne)

Résumé: En faisant la recherche systématique de 1600 K négatifs, dans les émulsions nucléaires, nous avons observé 2 désintégrations selon le mode τ^- et 50 événements où le K disparaît en vol en un point où ne sort seulement qu'une trace fine. De ces 50 événements 12 ont été associés à un blob et nous avons montré que les 38 sans blob sont des désintégrations de K négatifs en vol, leur analyse détaillée donne les résultats suivants:.

a) Les modes de désintégration de $K^-_{\mu_2}$ et $K^-_{\pi_2}$ sont considérés comme établis. L'énergie cinétique moyenne des secondaires chargées dans le système du K au repos est:

$$K^-_{\mu_2} \quad T_\mu^{CM} = 153 \pm 4 \text{ MeV}$$
$$K^-_{\pi_2} \quad T_\pi^{CM} = 109{,}5 \pm 3 \text{ MeV}.$$

b) L'abondance relative du mode de désintégration de $K^-_{\mu_2}$ est d'environ 50%.

c) La vie moyenne des mésons K^- est:

$$\tau_{K^-} = (1{,}60 \pm 0{,}03)\ 10^{-8} \text{ sec}.$$

Une analyse complète sera prochainement publiée dans le Nuovo Cimento.

Erzeugung harter Schauer aus Lithium durch geladene Partikel der kosmischen Strahlung

von M. Gribi, F. Heinrich, H. Loeliger, J. M. Pictet, A. Rytz, H. Wäffler und M. Walter

(Physikalisches Institut der Universität Zürich)

Mit Hilfe einer zählrohrgesteuerten Mehrplattenwilsonkammer von 49,5 cm Breite, 45 cm mittlerer Höhe und 30 cm Tiefe wurden auf dem Jungfraujoch (3450 m ü. M.) die Ereignisse, die in einem direkt über der Kammer stehenden Lithiumblock (48,5 × 18 × 13 cm³) von hochenergetischen Protonen ausgelöst wurden, photographiert.

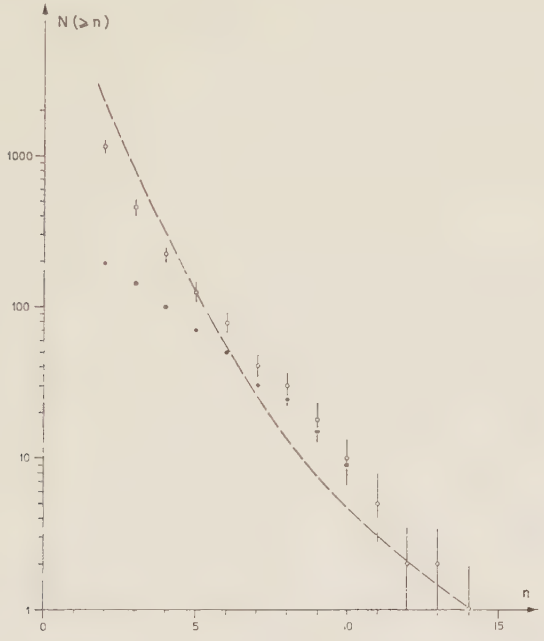


Fig. 1

Integrale Multiplizitätsverteilung der Schauer aus Lithium. ····· unkorrigierte experimentelle Verteilung. ○○○○○○ korrigierte experimentelle Verteilung. ––––– theoretischer Verlauf der Verteilung nach Terreaux[2]).

Das schnelle Expansionsventil ist eine Modifikation des Typs von Meyer und Stodiek[1]). Es hat bei grosser Öffnung (250 cm²) die relativ kleine Öffnungszeit von etwa 8 msec und verbessert die Spurenqualität gegenüber einem konventionellen elektromagnetischen Ventil ganz erheblich.

Aus unseren Aufnahmen wählten wir eine Serie von 8600 Aufnahmen aus, wovon 277 Schauer aus dem Lithiumtarget enthalten. Sicher für

die Statistik befunden wurden davon nur 197; nämlich diejenigen, die sicher aus dem Lithium stammen und zugleich die Bedingung erfüllen, dass mindestens 2 Spuren die ganze Kammer ohne Interaktion durchlaufen. Die Totalzahl der geladenen Sekundären betrug 900 ± 25. Die mittlere Multiplizität der geladenen Schauersekundären ergibt sich unkorrigiert zu 4,3 und nach einer Korrektur für den zu erwartenden Verlust, hauptsächlich von Schauern niedriger Multiplizität, durch die Anordnung der Zählrohre zu 2,85. Vergleicht man die experimentell gefundene integrale Multiplizitätsverteilung mit derjenigen, die von

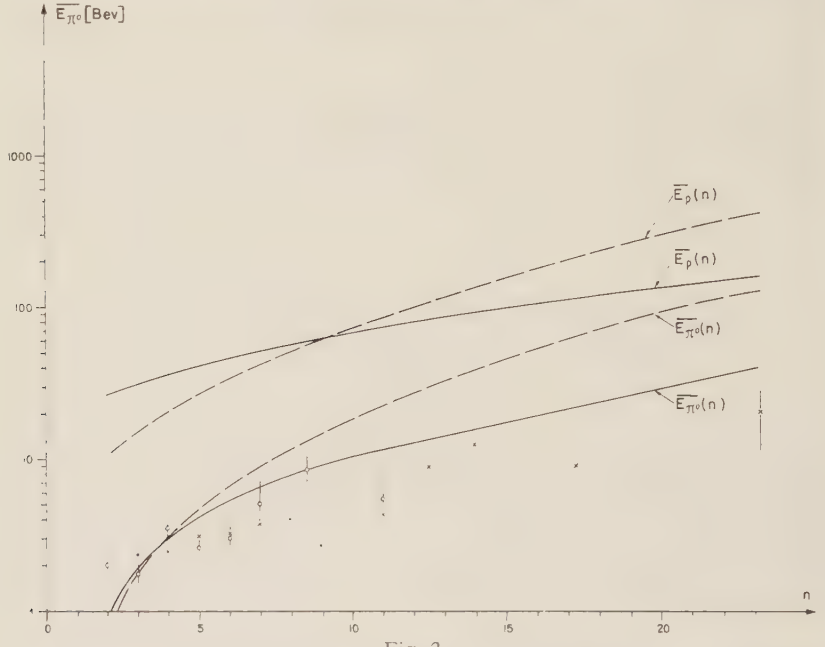


Fig. 2

Mittlere Energie E_{π_0} der π_0-Komponente der Schauer mit Multiplizität n. Experimentelle Werte für Lithium (°). Experimentelle Werte für Blei (×) nach DEUTSCHMANN[5]). Theoretische Kurve für $\sigma = 0{,}45$ (– – – –) und $\sigma = 0{,}25$[2]) (———).

TERREAUX und HEITLER[2]) berechnet wurde (mittlere Stosszahl im Li-Kern 2,7), so zeigt sich, dass sich auch die Frequenz der hohen Multiplizitäten (12, 13, 14) recht gut erklären lässt (Fig. 1). Die mittlere theoretische Multiplizität ist 2,60.

Da die Mehrplattenwilsonkammer ein sehr geeignetes Instrument zur Energiebestimmung von Elektronenkaskaden darstellt, lässt sich, auch ohne Magnetfeld, eine Aussage über die Energien der Schauer machen. Im allgemeinen liessen sich nämlich auf den Aufnahmen je 2 Elektronen-

kaskaden, die in Richtung des Schauerursprungs zeigten, recht gut trennen und so zu den 2 Zerfalls-γ-Quanten eines zum Schauer gehörigen neutralen π-Mesons zuordnen. Das Verhältnis der Zahl der neutralen Mesonen zur Totalzahl der geladenen Sekundären ergab sich zu $(187 \pm 20)/(900 \pm 25)$. Eine verfeinerte Kaskadentheorie von OTT[3]) ermöglicht die theoretische Voraussage der Entwicklung einer Elektronenkaskade durch die 3 Goldlegierungsplatten der Kammer. Das Auszählen der Elektronenspuren in den verschiedenen Kammerkompartimenten und der Vergleich mit dem Winkel des Zerfallsquantenpaares[4]) erlaubte die Bestimmung der π^0-Energien. Fig. 2 zeigt die schliesslich erhaltene Verteilung der mittleren Energien der π^0-Komponente der Schauer mit der Multiplizität n als Funktion dieser Multiplizität aufgetragen. Der theoretische Verlauf dieser Verteilung, die nach TERREAUX und HEITLER[2]) unter der Annahme eines mittleren relativen Energieverlustes eines Nukleons beim Zusammenstoss mit einem andern Nukleon von $\sigma = 0{,}25$ berechnet ist, kommt den experimentellen Resultaten nahe. DEUTSCHMANNS[5]) Resultate für Blei lassen sich ebenfalls gut an die Interpretation von TERREAUX[2]) anpassen.

Die integrale Häufigkeitsverteilung einer bestimmten Multiplizität n in Abhängigkeit von der π^0-Energie in doppelt logarithmischer Darstellung aufgetragen, sollte bis zu einer bestimmten Minimalenergie (dem Schwellenwert für die Produktion eines Schauers mit n-Teilchen) eine Gerade mit der Neigung $\gamma = -1{,}5$ ergeben. Diese Gerade spiegelt die Häufigkeitsverteilung des Primärspektrums wider. Innerhalb der Grenzen unserer Statistik für Lithium ergibt sich für die totale Häufigkeitsverteilung als bester Wert für die Steigung $\gamma = -1{,}35$.

Ein kritischer Vergleich unserer Resultate sowohl mit der Theorie von HEISENBERG[6]) wie auch mit derjenigen von TERREAUX und HEITLER[2]) bleibt einer ausführlicheren Arbeit vorbehalten[7]).

Literatur

[1]) MEYER und STODIEK, Rev. Sc. Instr. *24*, 76 (1953).

[2]) TERREAUX, H.P.A. *24*, 568 (1951); HEITLER, JANOSSY, Proc. Phys. Soc. A *62*, 374, 669 (1949); HEITLER, JANOSSY, H.P.A. *23*, 417 (1950).

[3]) OTT, Zeitschr. f. Naturforschung *9a*, 6, 488 (1954), und HEISENBERG[6]).

[4]) ROSSI, High Energy Particles, Prentice Hall Inc, 4, 15 (1952).

[5]) DEUTSCHMANN, Zeitschr. f. Naturforschung *9a*, 6, 477 (1954).

[6]) HEISENBERG, Zeitschr. f. Physik *126*, 569 (1949); HEISENBERG, Vorträge über kosmische Strahlung (Springer, Berlin 1953).

[7]) J. M. PICTET, Dissertation, Universität Zürich (1958), nicht publiziert.

Projekt eines Zyklotrons für schwere Ionen

von P. Stähelin, P. Marmier und P. Scherrer
(Physikalisches Institut, ETH. Zürich)

Eine ausführliche Beschreibung soll in den Helv. Physica Acta erscheinen, sobald das Zyklotron in Betrieb steht. Zur Zeit ist es noch ungewiss, ob das vorgesehene Zyklotron überhaupt zur Ausführung gelangt.

Polarisation der an Deuteronen gestreuten Neutronen

von M. Brüllmann, H.-J. Gerber, D. Meier
(Physikalisches Institut der ETH. Zürich)

Es wurde die Polarisation $P_2(\vartheta)$ für die elastische Streuung von 3,27-MeV-Neutronen an Deuteronen gemessen, im Hinblick auf die Abweichungen der Nukleon-Nukleon-Wechselwirkung von der Zentralkraft[1]).

1. Theorie: Der Wirkungsquerschnitt $\sigma(\vartheta, \varphi)$ für die Streuung eines polarisierten Strahles von Teilchen vom Spin 1/2 und vom Polarisationsgrad P_1 ist gegeben durch[2])

$$\sigma(\vartheta,\varphi) = \sigma_0(\vartheta) \cdot [1 + P_1 \cdot P_2(\vartheta) \cdot \cos\varphi] .$$

Dabei bedeutet $\sigma_0(\vartheta)$ den Wirkungsquerschnitt für die Streuung eines unpolarisierten Strahles, φ den Winkel zwischen der Polarisationsrichtung des einfallenden Strahles und der Normalen $\vec{n}$ der Streuebene, ϑ den Winkel zwischen den Flugrichtungen $\vec{k}_e$ und $\vec{k}_a$ des einfallenden und des gestreuten Teilchens im Schwerpunktssystem. Das Vorzeichen von $P_2(\vartheta)$ wird dadurch festgelegt, dass $\vec{k}_e$, $\vec{k}_a$ und $\vec{n}$ ein Rechtssystem bilden sollen.

$P_2(\vartheta)$ ist eine Eigenschaft der Wechselwirkung bei der Streuung und kann nur dann nicht identisch null sein, falls diese Wechselwirkung keine Zentralkraft ist.

2. Messmethode: Es steht ein Strahl senkrecht zur Flugrichtung polarisierter Neutronen von bekanntem Polarisationsgrad zur Verfügung[3]). Die Streuung wurde in der zur Polarisationsrichtung senkrechten Ebene beobachtet. Gemessen wurden $\sigma^+ \equiv \sigma(\vartheta, 0)$ und $\sigma^- \equiv \sigma(\vartheta, \pi)$, die Wirkungsquerschnitte für die beiden zum einfallenden Strahl symmetrisch liegenden Richtungen ϑ. Daraus erhält man

$$P_2(\vartheta) = \frac{1}{P_1} \cdot \frac{\sigma^+ - \sigma^-}{\sigma^+ + \sigma^-} .$$

3. Apparatur: Eine genaue Beschreibung der Erzeugung und Kollimation der Neutronen befindet sich bei MEIER, SCHERRER und TRUMPY[3]). Die polarisierten Neutronen fallen auf einen zylinderförmigen Streukörper aus Deuterobenzol (C_6D_6*), dem Scintillatorsubstanzen beigemischt sind und der in Lichtkontakt mit einer Photovervielfacherröhre steht. Diese registriert den Lichtblitz des Deuterons, das bei der Neutronstreuung gestossen wurde. Signale, die von Kohlerückstössen herrühren, lassen sich leicht unterdrücken. Als Zähler für die gestreuten Neutronen verwenden wir einen plastischen Scintillator. Wegen der geringen Energie der unter grossen Winkeln gestreuten Neutronen muss dieser Zähler sehr empfindlich eingestellt sein, und er zählt deswegen im Vergleich zum Effekt ein Vielfaches an Untergrund. Eine Koinzidenzstufe zwischen den beiden Zählern wählt nun (abgesehen von wenigen zufälligen Koinzidenzen) die wahren Streuereignisse aus. Die Justierungen wurden mit mehreren Methoden überprüft, so auch durch *n-p*-Streuung (Streukörper aus gewöhnlichem Benzol, C_6H_6).

4. Ergebnisse: Korrekturen wurden angebracht für Absorption im Streukörper und für Mehrfachstreuung. Der angegebene Fehler berücksichtigt nebst der statistischen Ungenauigkeit auch apparative Fehlerquellen.

Streuwinkel		$P_2(\vartheta)$
β_{Labor}	$\vartheta_{\text{Schwerpunkt}}$	
36°	53°	$(+3 \pm 6)\%$
50°	72°	$(+1 \pm 6)\%$
64°	91°	$(+3 \pm 6)\%$
90°	120°	$(-5 \pm 6)\%$
106°	135°	$(0 \pm 6)\%$
144°	161°	$(+7 \pm 10)\%$

Literatur

[1]) A. K. BOSE, Diss. Georg-August-Universität, Göttingen, 1957.
[2]) L. WOLFENSTEIN, Ann. Rev. Nucl. Science *6*, 43, (1956).
[3]) R. W. MEIER, P. SCHERRER und G. TRUMPY, Helv. Phys. Acta *27*, 577, (1954).

*) Ein ausführlicher Bericht über die Deuterierung von Benzol erscheint gesondert.

(p, n)-Reaktion an Mangan

von B. Lobkowicz, H. Guhl und P. Marmier
(Physikalisches Institut der ETH. Zürich)

Durch Untersuchung der γ-Spektren bei (p, n)- und (p, p')-Reaktionen an Mn^{55} wurden die Niveauschema von Mn^{55} und Fe^{55} im Bereich von 0,1 bis 2,5 MeV ermittelt[1]).

Mit dem 4-MeV-Protonenstrahl des ETH-Zyklotrons wurde eine dicke Mangantarget bestrahlt und die γ-Strahlung mit Hilfe von NaJ(Tl)-Kristallen von $1'' \times 1''$ und $2'' \times 2''$ beobachtet. Die elektrischen Impulse wurden einer fast-slow-Koinzidenzapparatur zugeführt, welche mit zwei linearen Gate ausgerüstet ist, und mit einem 20-Kanal- bzw. 1-Kanal-Impulsspektrographen registriert. Die Messapparatur ist in einer Arbeit von Guhl[1]) beschrieben worden.

Tabelle 1

Energien und Intensitäten der γ-Linien

E_γ (keV)	Ausbeute (N_γ/μ_{Coul})	Zuordnung
126 ± 2	$5{,}4 \cdot 10^6 \pm 10\%$	(p, p')
$(200 - 250)$	$< 5 \cdot 10^5$	—
410 ± 5	$1{,}2 \cdot 10^7 \pm 20\%$	(p, n)
475 ± 5	$8{,}5 \cdot 10^6 \pm 30\%$	(p, n)
850 ± 10	$2{,}0 \cdot 10^6 \pm 50\%$ *)	(p, p')
920 ± 20	$\sim 5 \cdot 10^6$ *)	(p, n)
930 ± 10	$2{,}8 \cdot 10^7 \pm 30\%$	(p, n)
1320 ± 20	$1{,}7 \cdot 10^7 \pm 40\%$	(p, n)
(~ 1350)		(p, p')
(1410)		(p, n)
(~ 1350)	$\sim 7 \cdot 10^5$ *)	(p, p')
(1410)	$\sim 5 \cdot 10^6$	(p, n)
1660 ± 20	$5 \cdot 10^6 \pm 40\%$	(p, n)
(1800)	$< 10^6$	—
2100 ± 100	$2 \cdot 10^6 \pm 50\%$	(p, n)
2520 ± 70	schwach	(p, n)

*) Auswertung aus Koinzidenzmessungen.

In Tabelle 1 sind die beobachteten γ-Linien aufgeführt. Die Genauigkeit, mit der die Intensitäten angegeben werden können, ist durch die Unsicherheit des abgezogenen Untergrundes und der Ansprechwahrscheinlichkeit der Detektoren beschränkt. Die Zuordnung zu einer (p, n)- oder (p, p')-Reaktion erfolgt dank Koinzidenzmessungen zwischen den γ-Linien und den Neutronen, die ebenfalls mit einem NaJ-Kristall gemessen wurden.

Folgende γ–γ-Koinzidenzmessungen sind durchgeführt worden (Energien in MeV): (0,126) (0,85; 1,35), (0,41) (0,92; 1,66), (0,475) (0,93), (0,93) (0,41; 0,47), (1,32) (keine γ), (1,66) (0,41). Um Koinzidenzen mit den Photospitzen von solchen mit dem Comptonuntergrund höherer

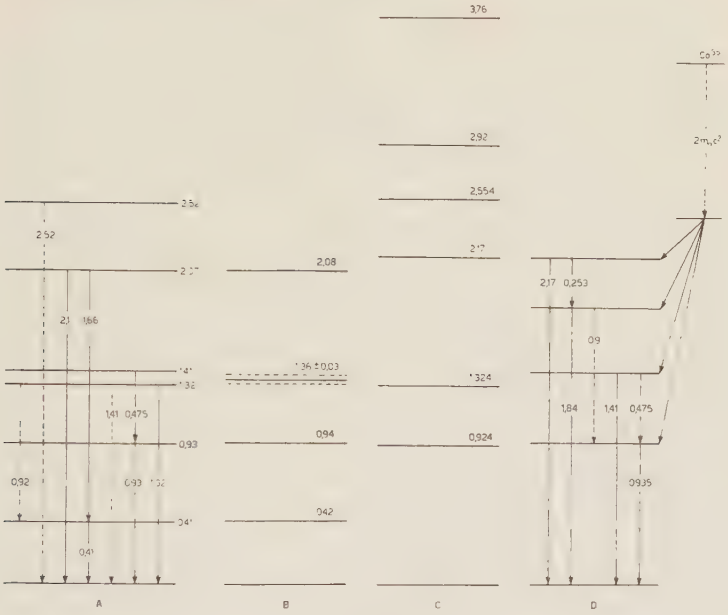


Fig. 1

Angeregte Zustände von Fe^{55}

A Vorliegende Messungen; *B* Stelson und Preston, Energiemessung der Neutronen mittels Photoplatten[2]); *C* Chapman und Slattery, Schwellenmessung mit Hilfe der fast-to-slow ratio[3]); *D* Caird und Mitchell, Zerfallsschema von Co^{55} [4]).

Linien sowie mit dem Neutronenuntergrund zu trennen, wurden Absorptionsmessungen gemacht.

Fig. 1 zeigt das gemessene Niveauschema der vorliegenden Arbeit (*A*) und im Vergleich dazu eine Messung der Neutronenenergien bei (p, n)-Reaktion (*B*)[2]), Schwellwertbestimmungen (*C*)[3]) und das Zerfallsschema von Co^{55} (*D*)[4]). Die γ-Übergänge in den Grundzustand der beiden Niveaus bei 1,32 und 1,41 MeV liessen sich nicht trennen. Aus der verbreiterten Linie bei 1,32 MeV wurde ein Intensitätsverhältnis von ca. 1:3 für die beiden γ-Übergänge von 1,32/1,41 MeV ermittelt, was mit den Messungen von Stelson und Preston[2]) in Übereinstimmung steht. Das Niveau bei 2,07 MeV ist nicht identisch mit dem beim Co^{55}-Zerfall angeregten Niveau von 2,17 MeV, da sein Zerfall über das Niveau von 0,41 MeV erfolgt.

*

Literatur

[1]) H. Guhl, Dissertation, ETH (1958).
[2]) P. H. Stelson und W. M. Preston, Phys. Rev. *82*, 655 (1951).
[3]) R. A. Chapman und J. C. Slattery, Phys. Rev. *105*, 633 (1957).
[4]) R. S. Caird und A. C. G. Mitchell, Phys. Rev. *94*, 412 (1954).

He^3-H^3-Messungen an einem Steinmeteoriten

von J. Geiss, H. Oeschger und P. Signer
(Physikalisches Institut der Universität Bern)

Die einzige bisher verwendete Methode, die «Strahlungsalter»[1]) in Meteoriten ergibt, die unabhängig von den schwer abschätzbaren Abschirmeffekten sind, besteht in der Messung der Gehalte an Helium-3 und Tritium in derselben Probe. T und He^3 entstehen als Spallationsprodukte, wobei Helium-3 einmal direkt produziert wird und zum anderen durch β-Zerfall des Tritiums. Das Verhältnis der Produktion He^3_{direkt}/T wird in dieser Arbeit zu 0,7 angenommen[2]), eine endgültige Korrektur für die Direktproduktion von Helium-3 kann jedoch erst gegeben werden, wenn weitere experimentelle Werte dieses Produktionsverhältnisses bei verschiedenen Energien vorliegen. Der Anteil der Direktproduktion von He^3 an der Gesamterzeugung beeinflusst jedoch nur die Absolutwerte der Strahlungsalter, nur wenig dagegen die Relationen der Strahlungsalter verschiedener Meteoriten untereinander (vgl.)[3]).

Wir haben den Gehalt an Helium-3 und Tritium in dem Chondriten Monte das Fortes, der 1950 gefallen ist, gemessen. Die Extraktionsmethoden werden in einer ausführlichen Arbeit beschriebenen werden. Das Tritium wurde in einem Proportional-Antikoinzidenzzählrohr[4]) gemessen, dessen Nulleffekt bei einem Nutzvolumen von 1,5 Litern 0,45 cpm beträgt. Die Zähleffekte lagen zwischen 2 und 3 cpm. Der He^3-Gehalt wurde durch isotopic-dilution-Methode unter Verwendung von He^4-Tracer bestimmt. Dabei wurde für das Massenspektrometer eine Zirkulationseinlassanlage verwendet.

Tabelle 1 zeigt die Resultate. Zum Vergleich sind die Ergebnisse von Begemann, Geiss und Hess[1]) an dem Achondriten Norton County angegeben, die die einzigen bisher veröffentlichten He^3/H^3-Messungen an Steinmeteoriten darstellen*). Man erkennt, dass die Tritiumwerte in den beiden Steinmeteoriten etwa gleich sind, während der He^3-Gehalt in dem Chondriten um etwa einen Faktor 4 kleiner ist. Dadurch ergibt sich

*) Fireman und Schwarzer[5]) haben He^3- und T-Messungen an Eisenmeteoriten durchgeführt.

ein Unterschied im Strahlungsalter um diesen Faktor. Strahlungsalter für Chondrite in der Grössenordnung von 50 Ma waren schon in einer früheren Arbeit[3]) auf Grund der A^{38}-Gehalte[6]) vermutet worden.

Tabelle 1

Name des Meteoriten und Falljahr	Tritiumaktivität in Zerfällen pro Gramm u. Minute, auf Falldatum extrapoliert	He^3-Gehalt 10^{-6} cm^3 STP/g	Strahlungsalter 10^6 *a*
Monte das Fortes, Chondrit (1950)	0,30 ± 0,05	0,49 ± 0,05	50
Norton County, Achondrit (1948)			
Probe *A*[1])	0,29 ± 0,02	2,27 ± 0,11	240
Probe *B*[1])	0,24 ± 0,02	2,35 ± 0,11	280

Das junge Strahlungsalter des Chondriten Monte das Fortes kann nicht mit dem «Alter der kosmischen Strahlung» identifiziert werden, da der Meteorit Norton County ein weit grösseres Strahlungsalter hat*). Das Strahlungsalter von Monte das Fortes gibt daher eine Aussage über den Zeitpunkt, zu dem dieser seine präatmosphärische Grösse durch Herauslösen aus einem grösseren Objekt erhielt. Es lässt sich noch nicht entscheiden, ob dies durch ein einmaliges oder mehrmaliges Aufbrechen oder durch einen kontinuierlichen Auflösungsprozess erfolgt ist**).

Literatur

[1]) F. Begemann, J. Geiss und D. C. Hess, Phys. Rev. *107*, 540 (1957).

[2]) G. R. Martin, S. J. Thomson, G. Wardle und K. I. Mayne, Phil. Mag. *45*, 410 (1954).

[3]) J. Geiss, Chimia *11*, 349 (1957).

[4]) F. G. Houtermans und H. Oeschger, H. P. A. *28*, 464 (1955).

[5]) E. L. Fireman und D. Schwarzer, Geochim. Cosmochim. Acta *11*, 252 (1957).

[6]) J. Geiss und D. C. Hess, Astrophys. J. *127*, 224 (1958).

*) Die Möglichkeit, das niedrige Strahlungsalter durch Heliumverluste zu erklären, kann sicher ausgeschlossen werden, da alle A/K-Alter und $He^4/(U, Th)$-Alter an Chondriten bisher Alter von 10^9 Jahren und mehr ergeben haben.

**) Wegen der Gleichheit der Tritiumwerte in den beiden Meteoriten würde es schwer sein, den Unterschied von einem Faktor 4 in den Strahlungsaltern der beiden Meteorite durch starke räumliche Unterschiede der Intensität der kosmischen Strahlung zu erklären.

Isotopenanalyse des Osmiums aus dem Meteoriten Henbury

von J. Geiss, B. Hirt und P. Signer
(Physikalisches Institut der Universität Bern)
und W. Herr und E. Merz
(Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz)

Da die Halbwertszeit des Rhenium-187 jetzt mit ausreichender Genauigkeit zu $(6{,}2 \pm 0{,}7) \times 10^{10}$ Jahren bekannt ist[1]), haben wir begonnen, den Re^{187}-Os^{187}-Zerfall auf Meteoritenuntersuchungen anzuwenden. Es wurde mit dem Eisenmeteoriten Henbury begonnen, da dieser nach Goldberg und Brown[2]) einen besonders hohen Rheniumgehalt hat.

Das Osmium wurde - durch Os^{191}-Tracer kontrolliert – extrahiert und in das gasförmige OsO_4 überführt. Dieses wurde in den vergoldeten Ionisationsraum des Massenspektrometers geleitet, wobei es nur mit Glas, Teflon und Gold in Berührung kam. Der Ionennachweis erfolgte durch Elektronen-Multiplier.

Tabelle 1 zeigt die Ergebnisse. Unsere Resultate für «gewöhnliches» Osmium und die von Nier[3]) liegen gerade noch innerhalb der Fehlergrenzen. Es ist jedoch durchaus möglich, dass die beiden verwendeten Osmium-Proben verschiedenen Gehalt an Os^{187} haben, wie dies ja beim «gewöhnlichen» Blei bekannt ist.

Tabelle 1

Probe	Os^{187}/Os^{186}
Henbury Eisenmeteorit	$1{,}128 \pm 0{,}03$
«gewöhnliches» Osmium (Merck) . .	$0{,}971 \pm 0{,}035$
Nier[3]) «gewöhnliches» Osmium . . .	$1{,}036 \pm 0{,}031$

Der Unterschied zwischen dem Osmium des Henbury-Meteoriten und dem gewöhnlichen irdischen Osmium ist sicher. Dies zeigt, dass ein erheblicher Teil des kosmisch existierenden Os^{187} radiogener Herkunft ist. Die Bestimmung der chemischen Gehalte an Osmium und Rhenium durch Neutronenaktivierung in der Henbury-Probe ist noch nicht abgeschlossen.

Für eine Abschätzung der zu erwartenden Effekte sei hier einmal angenommen, dass das Verhältnis der kosmischen Häufigkeiten von Osmium und Rhenium, das Suess und Urey[4]) geben, in diesem Meteoriten gerade vorliegt. Dann ergibt sich, dass in ihm vor $4{,}5 \times 10^9$ Jahren das Verhältnis $Os^{187}/Os^{186} = 0{,}85$ gewesen ist. Das würde bedeuten, dass auch ein erheblicher Teil des heute im irdischen Osmium vorliegenden Os^{187} durch radioaktiven Zerfall entstanden ist. Eine exakte Antwort auf diese Frage ist jedoch erst möglich, wenn die Gehalte an Rhenium und Osmium in unserer Meteoritenprobe gemessen sind.

Literatur

[1]) W. Herr und E. Merz, Zeitschr. f. Naturforschung *13a*, 231 (1958).
[2]) E. Goldberg und H. Brown, Phys. Rev. *76*, 1261 (1949).
[3]) A. O. Nier, Phys. Rev. *52*, 885 (1937).
[4]) H. E. Suess und H. C. Urey, Rev. Mod. Phys. *28*, 53 (1956).

Verwendung der Seitenbandtechnik zur Messung magnetischer Kernrelaxationszeiten

von E. Brun, J. Oeser und H. H. Staub
(Physikalisches Institut der Universität Zürich)

Halbach[1]) schlug zur Beobachtung magnetischer Kernresonanzen ein Modulationsverfahren (Seitenbandtechnik) vor, das Signale unabhängig von Modulationseffekten[2]) liefert. Oeser[3]) zeigte, dass diese Signale

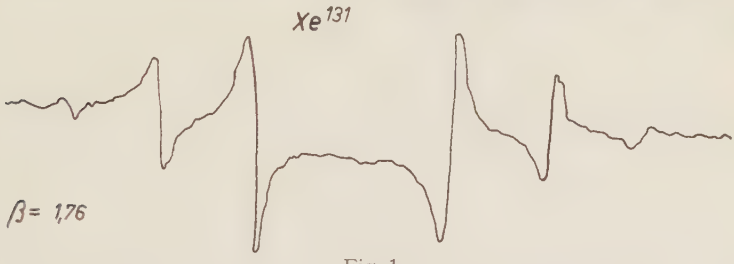


Fig. 1

Kernresonanzsignale von Xe^{131} in Xe-Gas unter 67 atm. Druck. Es handelt sich um den *u*-mode, wobei die Niederfrequenzdemodulation in Phase mit dem angelegten Modulationsfeld erfolgte.

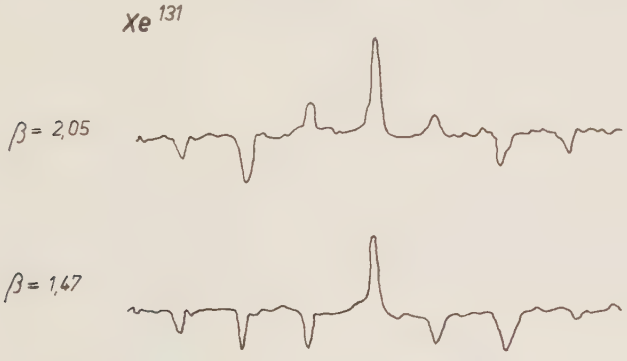


Fig. 2

Kernresonanzsignale von Xe^{131} in Xe-Gas unter 67 atm. Druck. Es handelt sich um *u*-modes, wobei die Niederfrequenzdemodulation 90° ausser Phase mit dem angelegten Modulationsfeld erfolgte.

Lösungen der phänomenologischen Blochschen Gleichungen sind und demnach eine Bestimmung der beiden Kernrelaxationszeiten T_1 und T_2 ermöglichen. Erfüllt das bei derartigen Resonanzexperimenten angelegte Modulationsfeld $H = H_m \cdot \cos \Omega t$ die Bedingung

$$\Omega T_1 \geq \Omega T_2 \gg \sqrt{1 + (\gamma H_1)^2 T_1 T_2},$$

so erhält man über Seitenbänder verteilte «slow passage»-Signale[4]), die wesentlich vom Parameter $\beta = \gamma H_m/\Omega$ abhängen. In den Fig. 1 und 2 sind einige solcher Signale wiedergegeben.

Literatur

[1]) K. Halbach, Helv. Phys. Acta *29*, 37 (1956).
[2]) K. Halbach, Helv. Phys. Acta *27*, 259 (1954).
[3]) J. Oeser, Dissertation, Universität Zürich (1957).
[4]) F. Bloch, Phys. Rev. *70*, 460 (1946).

Elektromagnetisch gestörte Gammawinkelverteilungen des 197-keV-Überganges im F^{19}

von M. Martin, R. Szostak und P. Marmier
(Zürich, ETH. und Berlin, Technische Universität)

Erscheint zurzeit ausführlich in den Helv. Phys. Acta.

Messungen der *g*-Faktoren von paramagnetischen Substanzen mit Hilfe der Richtungskorrelation

von P. Debrunner, W. Kündig, J. Sunier und P. Scherrer
(Zürich, Physikalisches Institut der ETH.)

Wir sind im Begriffe, mit Hilfe der Richtungskorrelation magnetische Momente von stark deformierten *gg*-Kernen im Bereich der seltenen Erden zu messen. Bei den stark paramagnetischen Elementen der seltenen Erden tritt folgende Schwierigkeit auf. Das Magnetfeld am Ort des Kernes H_K ist nicht gleich dem angelegten Feld H_{ext}, sondern

$$H_K = H_{ext}(1 + k\chi) \qquad \chi = \text{Suszeptibilität}, \quad k = \text{Konstante}$$

$$\chi = \frac{C}{T} \qquad C = \text{Curiekonstante}, \quad T = \text{absolute Temperatur}$$

Die mit Hilfe der bekannten Methoden der Richtungskorrelation[1]) ge-

messenen g-Faktoren sind daher nicht die wahren g-Faktoren g_w der Kerne, sondern

$$g_{eff} = g_w \left(1 + \frac{C k}{T}\right).$$

Misst man nun g_{eff} in Funktion der Temperatur, ist es möglich, den wahren g-Faktor ($T = \infty$) zu extrapolieren.

Wir haben nun am Beispiel des Dy^{160} versucht, diese paramagnetitische Temperaturabhängigkeit nachzuweisen. Dy^{160} zeigt das abgebildete Zerfallsschema[2]). Die von uns gemessene Kaskade ist kräftig

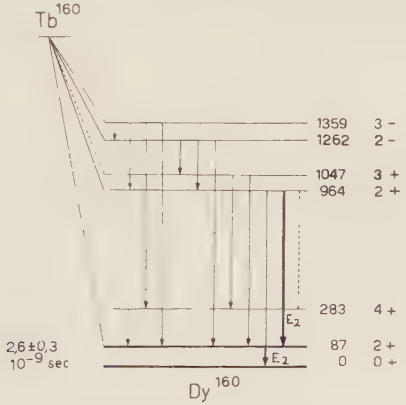


Fig. 1

ausgezogen. Leider ist die Richtungskorrelation trotz der sehr kurzen Lebensdauer des 87-KeV-Rotationsniveaus recht stark gestört. Bei der Störung handelt es sich wahrscheinlich nicht um die normale Quadrupolwechselwirkung, denn Quellen von verschiedener chemischer Form zeigen ungefähr immer dieselbe Störung.

Form	A_2 %	A_4 %
$TbCl_3$ in Wasser . . .	$-3{,}7 \pm 0{,}4$	$13{,}3 \pm 0{,}7$
$TbCl_3$ in Alkohol . . .	$-5{,}5 \pm 0{,}7$	$15{,}1 \pm 1{,}5$
Tb_2O_3 300° K	$-2{,}8 \pm 0{,}3$	$10{,}4 \pm 0{,}6$
Tb_2O_3 1300° K	$-3{,}3 \pm 0{,}4$	$9{,}4 \pm 0{,}7$
ungestörte Korrelation	$-7{,}6$	32,6

Die Messungen der g-Faktoren wurden bei zwei Temperaturen ausgeführt, mit folgendem Resultat:

T abs	g_{eff}
300°	$1{,}11 \pm 0{,}12$
1300°	$0{,}40 \pm 0{,}09$.

Daraus erhält man:

$$g_w = 0{,}18 \pm 0{,}08.$$

Die Auswertungen geschahen unter der Annahme, dass die Zeit der Störung kurz sei gegenüber der Lebensdauer des 87-KeV-Niveaus. Eine genauere Diskussion über den Mechanismus der Störung wird nach Abschluss weiterer Messungen erscheinen.

Wir danken Herrn KURT ALDER für seine anregenden Diskussionen und sein stetes Interesse an unserer Arbeit.

Literatur

[1]) E. HEER, R. RÜETSCHI und P. SCHERRER, Z. f. Naturf. *10a*, 834 (1955).
[2]) O. NATHAN, Nuclear Phys. *4*, 125 (1957).

Ein Paarspektrometer zur Ausmessung von Gammaquanten bis 26 MeV

von R. BALZER, H. KNOEPFEL, P. STOLL und W. WÖLFLI
(Physikalisches Institut der ETH. Zürich)

Die Vorteile des Paarspektrometers als Gammamessinstrument liegen im hohen Auflösungsvermögen und in der genauen und absoluten Energiebestimmung. Im Vergleich mit anderen Messmethoden ermöglicht dieser Apparat wesentlich genauere Messungen von Gammaquanten im Energiebereich über 4–6 MeV[1])[2]). Als Hauptnachteil gilt seine kleine Lichtstärke. Bei 8 MeV ist sie von der Grössenordnung von 10^{-7} gemessenen Paaren pro einfallendes Photon. Das Paarspektrometer kann daher nur im Zusammenhang mit starken Gammaquellen benützt werden. Beim Aufbau unseres Spektrometers, das hier kurz beschrieben werden soll, haben wir besonders darauf geachtet, diesem Nachteil entgegenzuwirken. Wir erreichen denn auch eine, im Vergleich mit anderen Paarspektrometern, stark verbesserte Lichtstärke von mehr als 10^{-6} bei 8 MeV. Vorläufig ist der Apparat am Swimmingpool-Reaktor «Saphir» in Würenlingen eingesetzt, wo verschiedene (n, γ)-Experimente geplant sind[3]).

Die Spektrometerkammer hat, den Polschuhen des Magnets entsprechend, rechteckigen Querschnitt (30 × 50 cm). Dies ermöglicht maximale Ausnützung des homogenen Magnetfeldes. Die beiden, je aus 9 Zählrohren bestehenden Zähleinheiten und der Konverter sind auf einem starren Rahmen montiert, der mühelos ausgewechselt werden kann. Das Blockschema der elektronischen Apparatur zeigt Fig. 1. Das wichtigste Element davon ist die Mischstufe, in der die nach dem geometrischen Abstand der ansprechenden Zählrohre geordneten Koinzidenzen auf 9 verschiedene Ausgangskanäle verteilt werden. Das Magnetfeld wird mit Hilfe der Protonenresonanzmethode im Bereich von 500–5000 Gauss auf 0,2 Gauss genau gemessen. Als Autodyn-Detektor dient die Transitron-

schaltung von HAHN und KNOEBEL[4]). Das Resonanzsignal wird zudem einem Phasendetektor zugeführt, der eine Regelspannung zur Stabilisierung des Magnetfeldes liefert. Damit kann der Erregerstrom der Gleich-

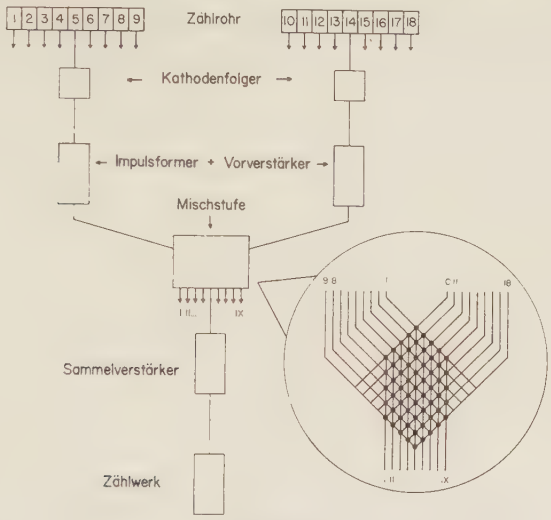


Fig. 1

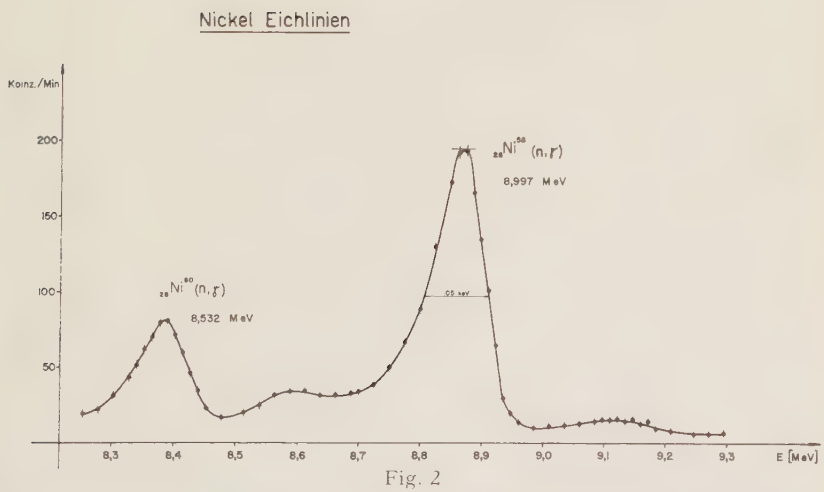


Fig. 2

stromspeisegruppe gesteuert werden. Parallel zur Magnetfeldstabilisierung ist zusätzlich für die Grobregelung eine Magnetstromstabilisierung vorhanden.

Als Beispiel einer Messung sind in Fig. 2 zwei Linien des unkorrigierten Nickel-(n, γ)-Spektrums aufgetragen. Es handelt sich um die beiden

Grundzustandsübergänge der Reaktion Ni^{58} (n, γ) Ni^{59} und Ni^{60} (n, γ) Ni^{61}. Die Halbwertsbreite der Linien bleibt beim Gamma-Paarspektrum über den ganzen in Frage kommenden Energiebereich praktisch konstant. In unserem Fall beträgt sie 105 keV; dies ergibt bei 10 MeV eine Auflösung von 1%. Zu beachten ist, dass die aufgetragene Koinzidenzenzahl auf «Gewicht eins» reduziert ist: wird z. B. im Kanal V gemessen (vgl. Fig. 1), so ergeben sich 9mal mehr Koinzidenzen pro Minute als angegeben.

Eine ausführlichere Arbeit über das Paarspektrometer wird später in den Helv. Phys. Acta erscheinen.

Literatur

[1]) Walker und McDaniel, Phys. Rev. *74*, 315 (1948).
[2]) Kinsey und Bartholomew, Can. J. Phys. *31*, 537 (1953).
[3]) Vgl. H. Knoepfel, Ch. Menoud und P. Stoll, Helv. Phys. Acta, *31*, 330 (1958).
[4]) Knoebel und Hahn, Rev. Sc. Instr. *22* (1951).

Betriebsbedingungen und Möglichkeiten der Thermalisierung im Versuchskanal des Swimmingpool-Reaktors

von H. Knoepfel, Ch. Menoud und P. Stoll
(Physikalisches Institut der ETH. Zürich)

Im Zusammenhang mit den (n, γ)-Experimenten am Swimmingpool-Reaktor «Saphir» in Würenlingen galt es, die wichtigsten Daten über Neutronenfluss und Gammastrahlung im ETH-Versuchskanal zu bestimmen[1]). Zusätzlich wurde noch das Problem der Thermalisierung untersucht, da ein möglichst grosser Anteil thermischer Neutronen in vielen Fällen wünschenswert ist. Aus technischen Gründen konnte leider die (mit einer thermischen Kolonne leicht zu erreichende) Thermalisierung nur im Innern des Versuchskanals vorgenommen werden. Dadurch wurden dem ganzen Problem enge Grenzen gesetzt. Von Anfang an war klar, dass die ins Rohr eingeführten Moderatorsubstanzen keinen sehr grossen Einfluss auf die Neutronenflussverteilung haben konnten, da die mittlere Streuweglänge fast von der gleichen Grössenordnung des Kanaldurchmessers (120 mm) ist. Diese Substanzen bewirken vielmehr, dass die Neutronen in das den Kanal umgebende leichte Wasser gestreut werden (vgl. Fig. 4), wo sich ein grosser Teil des eigentlichen Moderationsprozesses abspielt. Da die genaue theoretische Behandlung des Moderationsprozesses unter den gegebenen Bedingungen nicht möglich ist[2]), wurde das Problem experimentell abgeklärt.

Die Messmethode. Die Messung des thermischen Neutronenflusses erfolgte durch Aktivierung von Goldfolien, die von der Reaktor AG. mit Hilfe der Basler Neutronenquelle absolut geeicht worden waren[7]). Der relative Fehler unserer Messergebnisse beträgt ca. 5%. Der absolute Fehler (Eichung, Reaktorleistung, usw.) kann nicht mit Sicherheit angegeben werden. Alle Resultate sind auf die maximale Reaktorleistung von 1 MW bezogen.

Die Neutronenflussverteilung im Versuchskanal, mit und ohne Moderator. Die Neutronenflussverteilung im Kanal (mit 15 cm Wismut) ist in Fig. 1

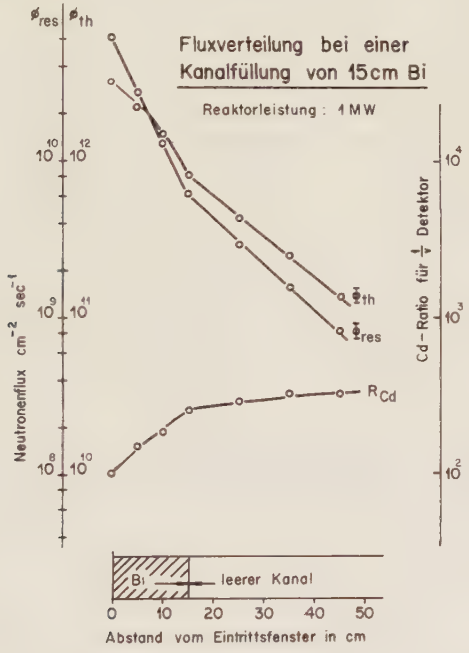


Fig. 1

aufgetragen. Daraus ist z. B. zu entnehmen, dass der thermische Neutronenfluss bei 1 MW Reaktorleistung am Kanalanfang $3{,}1 \cdot 10^{12}$ cm^{-2}-sec^{-1} beträgt. Zur Untersuchung der Thermalisierungsmöglichkeit wurden verschiedene Moderatoren in den Kanal eingeschoben (Graphit, leichtes und schweres Wasser). Das Ergebnis der Messung zeigt Fig. 2. Daraus ist ersichtlich, dass praktisch kein Unterschied zwischen dem Graphit- und dem Schwerwassermoderator besteht, obschon die mittleren Bremslängen dieser beiden Substanzen um ca. einen Faktor 1,5 verschieden sind. Selbst bei gewöhnlichem Wasser, das im Vergleich mit technischem D_2O einen 220mal grösseren Absorptionsquerschnitt besitzt, sinkt bei 20 cm Moderatorsubstanz der thermische Flux nur 3,5mal so

schnell wie beim schweren Wasser. Wohl steigt das Cd-Ratio um einen Faktor 8, doch ist dieser Vorteil mit einer grossen Abnahme des thermischen Neutronenflusses verbunden.

Die Reaktor-Gammastrahlung und das Problem der Erwärmung. Das Spektrum der Reaktor-Gammastrahlung wurde nicht ausgemessen, da

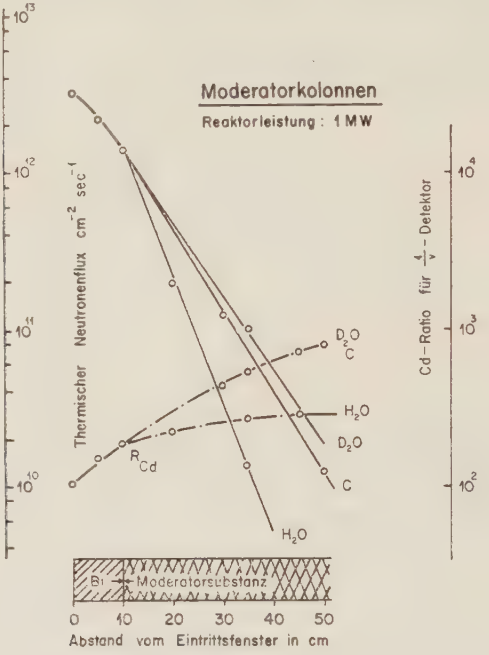


Fig. 2

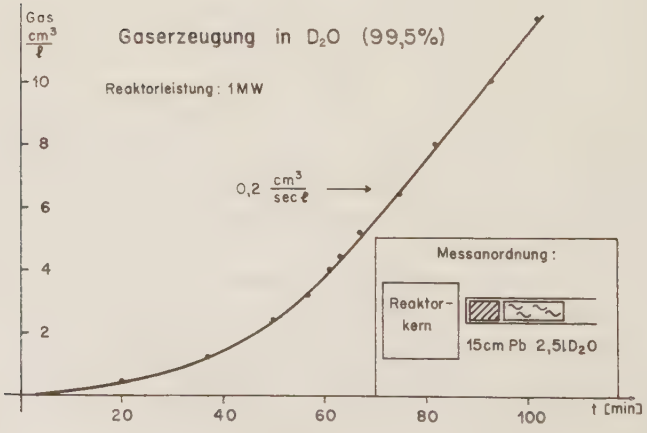


Fig. 3

der qualitative Verlauf dieses Spektrums aus Messungen an andern ähnlichen Reaktortypen bekannt ist[3]). Die Gammaintensität beträgt am Kanalanfang ca. 10^8 r/h (1 MW)[4]). Im Zusammenhang mit der Gammastrahlung ist das Problem der Erwärmung von grossem praktischem Interesse. Wir haben die Temperatur eines Blei- und eines Wismutklotzes gemessen und das Ergebnis in Tab. 1 zusammengefasst[5]). Daraus folgt z. B., dass sich ein Wismutklotz bei maximaler Reaktorleistung auf über seine Schmelztemperatur erwärmt.

Tabelle 1

	Menge	Schmelzpunkt	Temp. bei 1 MW Reaktorleistung	Absorbierte Leistung (1 MW)	Absorbierte Leistungsdichte (1 MW)
Blei	19 kg	327,4° C	250° C	362 *w*	0,21 *w*/cm³
Wismut	5,4 kg	271° C	280° C	115 *w*	0,20 *w*/cm³

Die Gasentwicklung im bestrahlten D_2O. Unter Einwirkung des Neutronenflusses und der Gammastrahlung entsteht im schweren Wasser Gas, wobei die Reinheit eine grosse Rolle spielt[6]). Wir haben diese Gaserzeugung quantitativ gemessen und in Fig. 3 in Funktion der Zeit aufgetragen. Im Sättigungsgebiet ergibt sich eine Gasentwicklung von 0,2 cm³/sec. l (Normaldruck). Das D_2O hatte einen spez. Widerstand von $0{,}60 \cdot 10^5$ Ohm. cm.

Der Kollimator für die (n,γ)-Experimente. Auf Grund der mit den obigen Messungen gesammelten Erfahrung wurde die Kollimationseinrichtung für die (n,γ)-Experimente entworfen und konstruiert (Fig. 4).

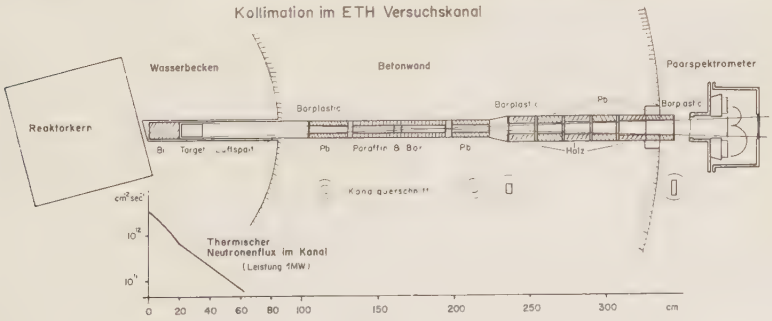


Fig. 4

Diese Anordnung hat sich in jeder Hinsicht bewährt. Für den Betrieb bei 1 MW Reaktorleistung, bei der sich der Wismutzylinder auf ca. 280° C erwärmen würde, ist eine Wasserkühlung mit geschlossenem Kreislauf

vorgesehen. Zusätzlich wurde noch eine Thermosicherung eingebaut, die bei einer Wismut-Temperatur von 160° C den Reaktor automatisch abstellt.

Literatur

[1]) Vgl. R. Balzer, H. Knoepfel, P. Stoll und W. Wölfli, Helv. Phys. Acta *31*, 328 (1958).

[2]) Davison, Neutron Transport Theory, Oxford 1957.

[3]) Research Reactors, S. 109, United States Atomic Energy Commission, McGraw-Hill 1955.

[4]) Mündliche Mitteilung der Reaktor AG.

[5]) Vgl. H. Claiborne *et al.*, Nucleonics, Oct. 1957, p. 114; Reactor Handbook (AEC.), Physics, p. 701, McGraw-Hill 1955.

[6]) Vgl. Actes Conf. Int. Nations Unies, Genève 1955, Vol. 7, p. 597; Schwarz *et al.*, J. Amer. Chem. Soc. *76*, 4693 (1954); Allen *et al.*, J. Phys. Chem. *56*, 575 (1952).

[7]) F. Alder und P. Huber, Helv. Phys. Acta *22*, 368 (1949).

Kernspektroskopische Untersuchungen der radioaktiven Isotope Hg – Au^{195} und Hg – Au^{193}

von **J. Brunner, J. Halter** und **P. Scherrer,** ETH., Zürich

(7. III. 1958)

Summary. The decays of Hg^{195} and Hg^{193} have been investigated using β- and γ-spectroscopy and coincidence techniques. The resulting level schemes of Au^{195} and Au^{193} are compared with the predictions of the nuclear models (shell model and collective model). For most levels spin and parity are determined and proton configurations are derived from considerations based on the shell model. The level schemes of Au^{197}, Au^{195} and Au^{193} show remarkable analogies up to energies of $\sim$ 1,5 MeV.

I. Einleitung

In den letzten Jahren hat sich in der Kernspektroskopie eine grosse Menge von Tatsachenmaterial angehäuft. Es wurde denn auch versucht, dieses Material nach geeigneten Gesichtspunkten zu ordnen. Insbesondere liefern die zahlreichen experimentellen Resultate eine Möglichkeit, die Grundgedanken, die zu den verschiedenen Kernmodellen führen, auf ihre Richtigkeit zu prüfen. Als allgemeine Leitidee haben fast alle Kernmodelle die Anschauung gemeinsam, dass sich die Nukleonen in einem mittleren Potential bewegen.

Das älteste und einfachste Kernmodell ist das Schalenmodell nach M. G. Mayer[1]) und Haxel, Jensen, Suess[2]). Das Schalenmodell setzt voraus, dass das mittlere Potential zeitunabhängig und kugelsymmetrisch ist. Unter Verwendung einer geeigneten Spin-Bahn-Kopplung war es möglich, die Spins und magnetischen Momente der Grundzustände der Kerne mit wenigen Ausnahmen vorauszusagen. Das Modell versagt aber im allgemeinen zur Erklärung der Eigenschaften der angeregten Zustände und der Übergangswahrscheinlichkeiten.

Besonders die Tatsache, dass die Übergangswahrscheinlichkeiten der E2 fast immer grösser sind als sie für Einteilchenübergänge berechnet werden, haben zu den Ideen des Kollektivmodells von Bohr und Mottelson[3]) geführt. Hier fällt nun die Beschränkung, dass das mittlere Potential zeitunabhängig und kugelsymmetrisch sein muss, dahin. Im allgemeinen erwartet man für ein zeitunabhängiges mittleres Potential $V(r)$ Einteilchenzustände, während bei einem Potential $V(r,t)$ Schwin-

gungen um eine Gleichgewichtslage und speziell bei deformierten Kernen Rotationen auftreten können.

Abgeschlossene Schalen ergeben besonders stabile und kugelsymmetrische Kerne. Teilchen ausserhalb abgeschlossener Schalen erzeugen eine Tendenz zur Deformation der Kerne. Sowohl runde wie deformierte Kerne haben typische Spektren. Charakteristisch für runde Kerne sind die Spektren der *g-g*-Kerne mit der Spinfolge $0^+ - 2^+ - 2^+$ oder 4^+ mit annähernd gleichen Niveauabständen, während die deformierten Kerne typische Rotationsspektren mit Niveauabständen proportional $I\ (I+1)$ besitzen.

Die Gesamtheit der Kerne lässt sich in verschiedene Regionen aufteilen. Berücksichtigt man nur Kerne mit $A > 28$, so zeigen die Kerne mit $A < 150$ und $A \sim 208$ Tendenz zu kugelsymmetrischem Potential. Andererseits haben Kerne mit $150 < A < 190$ und $A > 222$ Tendenz zu Deformation. Im letzteren Bereich erwartet man den nunmehr zu einem deformierten Potential gehörenden Einteilchenzuständen überlagerte Rotationsspektren und eventuell Vibrationsspektren. Die zusätzlichen Freiheitsgrade üben hier ihren Einfluss auf die Übergangswahrscheinlichkeiten aus.

Die Au-Kerne liegen in einem Zwischengebiet. Nach den Spektren gehören sie zu den runden Kernen. Sie grenzen aber nahe an das Gebiet, in dem Deformationen auftreten. Sie verdienen deshalb ein gewisses Interesse. Man kann bei der Interpretation ihrer Zerfallsschemata Antwort auf folgende Fragen erwarten:

a) Wie weit liefert das Schalenmodell eine Erklärung für die auftretenden Niveaus?

b) Inwiefern machen sich kollektive Bewegungen (Rotationen usw.) bemerkbar?

Über das Zwischengebiet, in dem die Au-Kerne liegen, sind bisher wenige ausführliche Arbeiten erschienen. Die von Andersson *et al.* untersuchten Tl-Isotope[6]) gehören noch in den Bereich, in dem das Schalenmodell gute Resultate liefert. Die Ergebnisse von Sawn und Hill über Os- und Ir-Isotope[4]) und von Ewan[32]) über Pt^{193} werden nicht diskutiert im Hinblick auf Kernmodelle. Wir selbst haben bereits einige Arbeiten über Hg- und Au-Isotope veröffentlicht[7]) [8]) [9]) [10]) [11]).

Die vorliegende Arbeit ist dem Abschluss dieser Untersuchungen gewidmet. Es werden zunächst die experimentellen Methoden beschrieben und anschliessend die Resultate aus den kernspektroskopischen Untersuchungen an den Zerfällen $Hg^{195} - Au^{195}$ und $Hg^{193} - Au^{193}$ zusammengestellt. Abschliessend wird diskutiert, inwiefern es möglich ist, durch eine von Pryce für Pb^{205} benützte Erweiterung der Vorstellungen des

Schalenmodells[13]) oder durch das Kollektivmodell von Bohr und Mottelson die Zerfallsschemata von Au^{195} und Au^{193} zu interpretieren.

Evidenzen für eine Interpretation im Sinne des Schalenmodells sind das Auftreten der erwarteten Isomere, die Form der Spektren und die Spins der Grundzustände. Aus den Versuchen mit Coulomb-Anregung von Au^{197} [3]) ergibt sich aber besonders aus den dabei gemessenen Übergangswahrscheinlichkeiten, die viel grösser sind als für Einteilchenübergänge und mit den von Alder und Winther[5]) nach dem Kollektivmodell berechneten Werten gut übereinstimmen, eine deutliche Evidenz für kollektive Schwingungen.

Es ist bisher noch nicht gelungen, eine die beiden Gesichtspunkte vereinigende Theorie zu formulieren, aus der zum Beispiel sämtliche Eigenschaften der in den Au-Isotopen gefundenen Niveaus erklärt werden könnten.

II. Experimentelle Methoden und Apparate

1. Allgemeines

Die im Laufe der Untersuchungen angewandten Methoden umfassen β-Spektroskopie mit Linsenspektrometer, Halbkreisspektrographen und doppelfokussierenden Spektrometern, γ-Spektroskopie mit Szintillationszählern und einem 20-Kanal-Impulsanalysator oder mit dem grossen Impulsspektrographen von D. Maeder[14]), β β- und $\beta-\gamma$-Koinzidenzmessungen am Linsenspektrometer in Verbindung mit dem 20-Kanal-Impulsanalysator. Wesentliche Ergebnisse lieferten uns Messungen, die wir während eines Aufenthaltes in Schweden als Gäste des Nobelinstitutes ausführen durften. Es standen uns dabei insbesondere das doppelfokussierende Spektrometer des Nobelinstitutes in Stockholm[15])[16]), das doppelfokussierende Spektrometer von E. Arbman am Gustaf-Werner-Institut in Uppsala[17]) und das Koinzidenzspektrometer von T. Gerholm am Physikalischen Institut der Universität Uppsala[18]) zur Verfügung. Die verwendeten Apparaturen sollen im folgenden teilweise kurz beschrieben werden. Für die in Schweden benützten Apparaturen verweisen wir auf die erwähnten Publikationen.

2. Quellenherstellung

Die Bestrahlungen von reinem Au^{197} zur Gewinnung der Radioaktivitäten wurden für die Messungen an der ETH im Synchro-Cyclotron in Harwell, für die Messungen in Schweden im Synchro-Cyclotron des Gustaf-Werner-Institutes in Uppsala ausgeführt. Auf Grund der Anregungskurven von Gillon et al.[12]) wurden als Protonenenergien gewählt:

für die Reaktion Au^{197} $(p, 3n)$ Hg^{195}: 33 MeV
für die Reaktion Au^{197} $(p, 5n)$ Hg^{193}: 55 MeV.

*

In allen Quellen wurde auch die Reaktion Au^{197} (p,n) Hg^{197} beobachtet.

Die Quellen wurden nach der schon früher beschriebenen Methode[7]) durch Verdampfen der Hg-Aktivität aus Goldspänen der Target unter Vakuum und Auffangen auf dünnen Au-Folien gewonnen.

3. β-Spektroskopie

Zum Studium der Konversionsspektren stand uns ein Halbkreisspektrograph mit Permanentmagnet und photographischer Registrierung[19]) zur Verfügung. Das Magnetfeld kann auf einen beliebigen Wert unterhalb 800 Gauss eingestellt werden. Der Messbereich umfasst Energien bis zu 1900 keV. Die beste bisher erreichte Auflösung (Halbwertsbreite) beträgt 0,5 $^0/_{00}$.

Das Linsenspektrometer von W. Zuenti[20]) genügt mit seinem Auflösungsvermögen von 1,7% für die Messung der komplizierten Einzelspektren nicht mehr. Hingegen ist es in Verbindung mit einem β- oder γ-Szintillationszähler ein geeignetes Instrument für Koinzidenzmessungen. Für Messungen an Hg — Au^{193} hat es sich als notwendig erwiesen, β^- und β^+ zu trennen. Dies gelang mit einer einfachen zusätzlichen Konstruktion. An zwei geeigneten Ringblenden decken leicht montierbare und demontierbare Scheiben je einen aus der Partikelbahn berechneten Sektor ab, so dass bei der detektornahen Blende gerade nur Partikel eines Vorzeichens durchgelassen werden. Durch Umpolen des Magnetfeldes wird das Spektrum des andern Vorzeichens messbar. Man verliert mit dieser Anordnung 56% des Raumwinkels. Die Durchlässigkeit der Blenden für das auszublendende Partikel ist $< 10^{-4}$. Von den stärksten in den Konversionsspektren vorhandenen Linien fand man in der β^+-Position keine Andeutung.

4. Szintillationszähler für Koinzidenzmessungen

Zum Nachweis der vom Linsenspektrometer analysierten Partikel wird wahlweise ein G.M.-Zählrohr oder ein Szintillationszähler mit einem Anthracenkristall benützt. Der Kristall ist mit einer Al-Folie von 5 μ Dicke abgedeckt. Ein Lichtleiter aus Plexiglas von 160 mm Länge verbindet den Kristall mit dem Multiplier vom Typ EMI 6260. Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Szintillationszählers (Fig. 1) wurde aus Messungen von Eichspektren (Ra D + E und Co^{60}) mit Szintillationszähler und G.M.-Zählrohr gewonnen; die Messungen mit dem G.M.-Zählrohr wurden für dessen Ansprechwahrscheinlichkeit und die Durchlässigkeit des Zählrohrfensters (Formvar) korrigiert. Aus den Ansprechwahrscheinlichkeitskurven entnimmt man, dass der Szintillationszähler bis zu β-Energien von 25 keV gut verwendbar ist.

Der γ-Szintillationszähler auf der Quellenseite des Linsenspektrometers für $\beta-\gamma$-Koinzidenzmessungen besteht in einem festen Block aus NaI-Kristall (31,8 mm Durchmesser und 25,4 mm Länge) und Lichtleiter (180 mm Länge) in einem geschlossenen Al-Rohr, Multiplier in

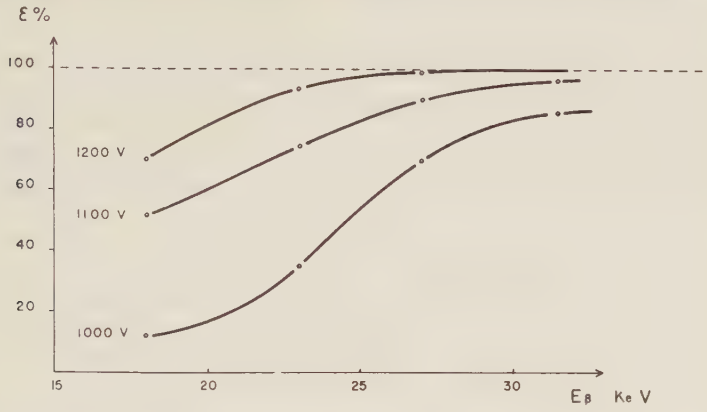


Fig. 1.
Ansprechwahrscheinlichkeit ε des β-Szintillationszählers am Linsenspektrometer (Hochspannung am Multiplier als Parameter).

einem Kühlgefäss, Vorverstärker für den langsamen Impuls und Koinzidenzverstärker. Die radioaktive Quelle im Präparathalter kann in verschiedene feste Positionen auf den Al-Zylinder, in dem sich der NaI-Kristall befindet, gebracht werden. Die Quelle wird durch eine Präparatschleuse ins Linsenspektrometer eingeführt. Die Eichkurve des Raumwinkels für verschiedene Geometrien (Fig. 3) bezieht sich nur auf die Photospitze einer γ-Linie (siehe dazu Abschnitt II 6).

Zur β-β-Koinzidenzmessanordnung wurde auf der Quellenseite des Linsenspektrometers ein Szintillationszähler mit einer Röhre EMI 6260 gebaut. Aus geometrischen Gründen musste ein Lichtleiter mit einer Länge von 250 mm gewählt werden. Der Anthracenkristall hat einen geometrischen Raumwinkel von 10,0%. Die Impulse des Szintillationszählers werden im 20-Kanal-Impulsanalysator registriert.

5. Die Koinzidenzmessanordnung

Die von uns benützte Koinzidenzmessapparatur besteht aus einer Verbindung von langsamen und schnellen Koinzidenzen. Sie ist im Blockschema der Figur 2 für den Fall der β-γ-Koinzidenzen prinzipiell erläutert. β- und γ-Szintillationsimpulse werden je in einem aus 4 Stufen von EFP 60-Sekundäremissionsröhren bestehenden schnellen Verstärker bei Übersteuerung und Amplitudenbegrenzung verstärkt. Ein am Ende kurz-

geschlossenes Delay-Kabel nach der vorletzten Verstärkerstufe bestimmt die Breite der Impulse, die in einer Dioden-Koinzidenzstufe gemischt werden. Unterdessen gehen die langsamen Impulse über eine kleine Verstärkung und eine Kathodenfolgestufe zu einem Verstärker. In den Untersetzern A und B werden die Totalzahlen der γ- und β-Einzelstösse registriert. Der Koinzidenzimpuls öffnet im Gateverstärker ein lineares Gate, das den mit einem Konversionselektron (oder β^+) koinzidierenden γ-Impuls unter Erhaltung seiner Impulshöhe für eine weitere Verstärkung freigibt. Von hier geht einerseits ein Ladeimpuls in der Länge von $10\,\mu$s, dessen Höhe bestimmt wird, zum 20-Kanal-Impulsanalysator, andererseits liefert der Gateverstärker einen verzögerten Registrierim-

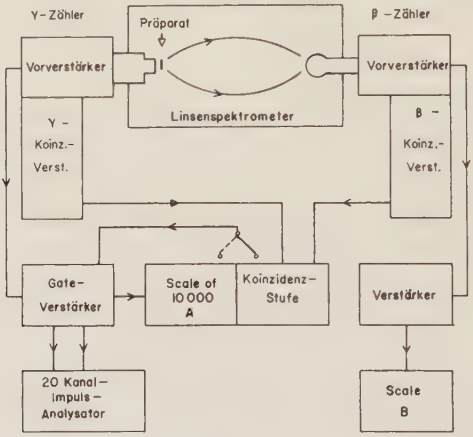


Fig. 2.
Blockschema der β–γ-Koinzidenzanordnung.

puls, der die Registrierung des analysierten Ladeimpulses auslöst. Im Impulsanalysator erscheint also das mit einer Konversionslinie koinzidierende γ-Spektrum. Zur Berechnung der zufälligen Koinzidenzen muss man das γ-Einzelspektrum kennen. Die zur Erlangung einer genügenden Statistik in den Koinzidenzmessungen notwendigen starken Quellen würden aber in den meisten Fällen die mechanischen Zählwerke des Impulsanalysators überlasten. Durch eine Untersetzung des γ-Einzelspektrums über einen schnellen Scale of 10000 erhält man die Möglichkeit, nach Wahl einen dekadischen Stoss als Gateimpuls, der das Gate öffnet und genau einen Impuls passieren lässt, abzuzweigen. Im Impulsanalysator lässt sich also je nach Stärke des Präparates ein 10- bis 10000fach untersetztes Einzelspektrum zählen.

Eine allfällig notwendige Verzögerung eines schnellen Impulses wird durch Einsetzen eines geeigneten Verzögerungskabels in die Verbindung

zwischen Koinzidenzverstärker und Koinzidenzstufe erreicht. Die Koinzidenzbreite hängt von der Länge der auf die Koinzidenzstufe gelangenden schnellen Impulse ab, die durch Delaykabel variiert werden kann. Die kürzeste von uns verwendete Koinzidenzbreite war $2\tau = 5 \cdot 10^{-8}$ s. Durch den Koinzidenzverstärker wird für die gleichzeitigen aber energetisch sehr unterschiedlichen Impulse eine zeitliche Verschiebung eingeführt, die in der Grössenordnung von 10^{-8} s liegt. Es ist deshalb nicht möglich, eine kleinere als die oben angegebene Koinzidenzbreite zu verwenden.

Für die Beschreibung der Elektronik verweisen wir auf eine Arbeit von H. Guhl[21]), der diese Apparatur entwickelt hat.

Bei Beginn der im folgenden beschriebenen Untersuchungen stand uns eine Koinzidenzanordnung zur Verfügung, die von D. Maeder gebaut wurde. Ihr Prinzip entspricht demjenigen einer Apparatur, die in einer früheren Arbeit bereits beschrieben wurde[22]).

6. Die β–β- und β–γ-Koinzidenzmethode

Zur Abklärung komplizierter Zerfälle ist die Anwendung einer Koinzidenzmethode unerlässlich, die in Verbindung mit Intensitätsmessungen nützliche Aufschlüsse über die Reihenfolge von Übergängen liefert. An-

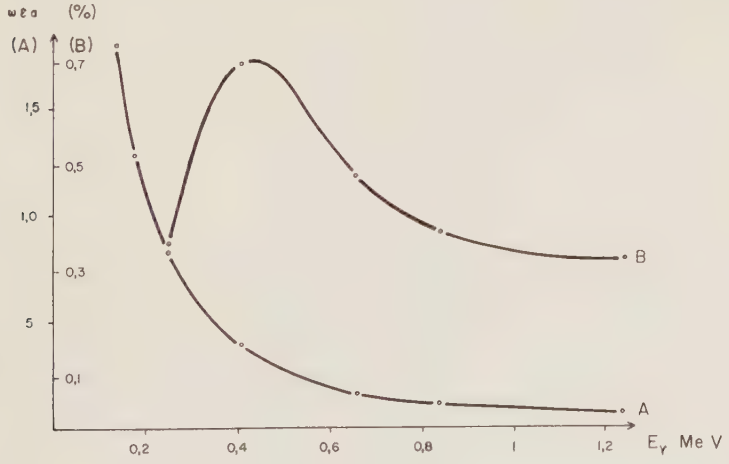


Fig. 3.

Raumwinkel $\omega\varepsilon a$ des γ-Szintillationszählers.
Kurve A: ohne Absorber; 11,3 mm Abstand Quelle-Kristall
Kurve B: mit 5 mm Pb-Absorber; 19,3 mm Abstand Quelle-Kristall.

dererseits erhält man aus ihnen oft genügend genaue Bestimmungen von Konversionskoeffizienten $\alpha = N_e/N_\gamma$, deren theoretische Werte für die meisten vorkommenden Multipole und Kernladungszahlen von Rose[23])

und Sliv[24]) berechnet und tabelliert sind. In einer Arbeit von O. Huber et al.[25]) ist eine Methode von β-β-Koinzidenzmessungen entwickelt worden, die mit einigen Vereinfachungen auch für unsere Anordnung Gültigkeit hat.

Die bei R. Joly[7]) beschriebene Methode der β-γ-Koinzidenzmessungen ist für unsere Anordnung vollgültig anwendbar; wir haben lediglich den intensiveren Präparaten und den höheren vorkommenden γ-Energien entsprechend einige weitere Geometrien verwendet. Die für die Auswertung wesentliche Formel lautet mit den bei R. Joly definierten Grössen

$$K^{\gamma_2}_{e^-_{1K}} = Z_{e^-_{1K}} \cdot \omega_{\gamma_2} \varepsilon_{\gamma_2} a_{\gamma_2} (1 - \varkappa_2) \qquad (1)$$

$K^{\gamma_2}_{e^-_{1K}}$ und $Z_{e_{1K}}$ werden gemessen. Wenn das Produkt aus Raumwinkel, Ansprechwahrscheinlichkeit und Absorption $\omega\varepsilon a$ bekannt ist, lässt sich aus Formel (1) die Grösse $(1 - \varkappa)$ berechnen. $\varkappa$ ist dabei der Konversionskoeffizient N_e/N_{Total}. Die Grösse $\omega\varepsilon a$, die sich hier immer auf die Photospitze einer γ-Linie bezieht, lässt sich für eine Geometrie aus Eichmessungen gewinnen. Nach der von Joly beschriebenen Methode haben wir die in Figur 3 wiedergegebenen Kurven als Funktion der γ-Energie aus den Eichpräparaten Hg^{203}, Au^{198}, Cs^{137}, Mn^{54} und Co^{60} erhalten.

III. Experimentelle Resultate

A. Hg^{195}–Au^{195}

1. Frühere Arbeiten

Spektroskopische Untersuchungen an Hg-Au^{195} wurden zuerst von Moon und Thompson[26]) unternommen. Diese Autoren geben lediglich die Energie einiger γ-Übergänge an. Eine grössere Arbeit über neutronenarme Hg-Isotope wurde von Gillon et al.[12]) veröffentlicht. Ihre Untersuchungen umfassten im wesentlichen Messungen am Halbkreisspektrographen im Energiebereich zwischen 10 und 300 keV. Auf Grund von Halbwertszeitmessungen, Intensitätsbestimmungen und Energiebeziehungen wurden für einige Hg-Au-Zerfälle Zerfallsschemata in den tiefsten Niveaus vorgeschlagen, unter andern auch für Hg-Au^{195}. Eine ausführlichere Arbeit über Hg^{197} und Hg^{195} wurde von Joly et al.[7]) herausgegeben. Inzwischen haben wir nach Untersuchungen an intensiveren Quellen vorläufige Ergebnisse aus β-Spektroskopie und Koinzidenzmessungen mitgeteilt[8])[9])[10])[11]), die nun im folgenden zusammengefasst, vervollständigt und interpretiert werden sollen.

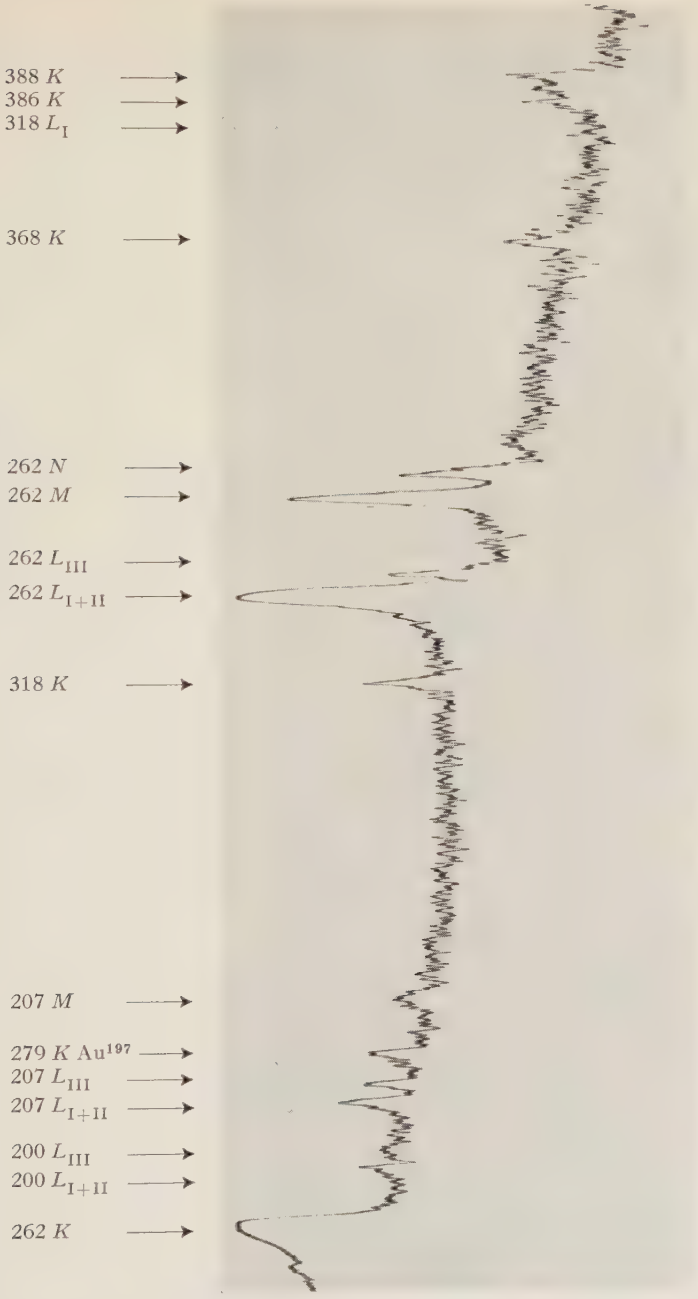


Fig. 4
Photometerstreifen eines Halbkreisspektrographen-Films (33-MeV-Bestrahlung für $Hg^{195} - Au^{195}$-Aktivität).

Tabelle 1

β-Energie keV	Interpretation		Intensität β	Intensität γ	Konversionskoeffizient	Multipol
	In Hg^{195} konvertierte Linien: HWZ 40 h					
39,60	122,8 K					
108,07	L_I					
108,71	L_{II}					$M4$ *)
110,65	L_{III}					
119,16	M_I					
119,93	M_{III}					
122,21	N_{III}					
122,72	O					
22,22	37,1 L_I					
22,86	L_{II}					
33,47	M_I					$M1$ *)
33,75	M_{II}					
36,73	N					
37,00	O					
	In Au^{195} konvertierte Linien: HWZ 40 h					
91,85	172,6 K	Int. aus Koinzidenz-Messung	250			
157,95	L					
287,72	368,4 K		80	1000	$\alpha_K \approx 0{,}08$	$M1$ oder
353,96	L_I		20			$M1+E2$
306,78	387,6 K	γ-Intensität	125	4200		
373,28	$L_{I/II}$	aus theor.	32			$E2$
375,62	L_{III}	Konversions-	11			
383,9	M	koeffizienten	12			
305,5	386,0 K		70	2500	$\alpha_K > 0{,}03$	$M1$ oder
371,33	452,2 K mit 386 L		30		$\alpha_K > 0{,}01$	$M1+E2$
437,4	L_I		6			
386,5	467,2 K		50	2800	$\alpha_K > 0{,}018$	
444,8	525,6 K		40		$\alpha_K > 0{,}015$	
510,1	L_I		7			
479,9	560,5 K		500	25000	$\alpha_K = 0{,}02$	
546,1	L_I		102			$M1+E2$
557,4	M		23			
494,51	575,2 K		18	1500	$\alpha_K \approx 0{,}01$	
599,1	680 K		10	1000	$\alpha_K \approx 0{,}01$	
881,8	962 K		3			
1161,0	1242 K		6			

*) Ergebnisse von Joly et al.[7]).

Tabelle 1 (1. Fortsetzung)

β-Energie keV	Interpretation	Intensität β	Intensität γ	Konversionskoeffizient	Multipol
	In Au^{195} konvertierte Linien: HWZ (9,5 h + 40 h)				
47,01	61,4 L_I				
47,65	L_{II}				
49,47	L_{III}				*)
57,98	M_I				$M1+E2$
58,28	M_{II}				
58,69	M_{III}				
60,91	N				
61,39	O				
99,46	180,2 K	3200			*)
165,78	L_I	730			$M1+E2$
166,41	L_{II}				
126,35	207,1 K γ-Intensität		3400		
193,02	L_I aus theor.	70			
193,40	L_{II} Konversions-	260			
195,18	L_{III} koeffizienten	160			$E2$
204,02	M_{II}				
204,28	M_{III}				
504,1	584,8 K	20	3700	$\alpha_K = 0{,}005$	$E1$
570,5	L	5		$\pm 0{,}003$	
518,8	599,5 K	60			
584,7	L_1	10			*)
596,5	M	2			$M1+E2$
699,7	780,4 K	120			*)
766,2	L	25			$M1+E2$
740,3	821 K	5	600	$\alpha_K \approx 0{,}01$	
761,5	842 K	5	2000		
849,7	930,4 K	10			
940	1020 K	3			
1029,2	1110 K	10			
1095,2	L	2			
1091,1	1172 K	9			
1157,8	L				
	Zum Isomer Au^{195} gehörende Linien: HWZ 40 h				
42,45	56,7 L_I				
42,98	L_{II}				
44,79	L_{III}				$E3$ *)
53,61	M_{II}				
54,06	M_{III}				
56,17	N				
56,70	O				
	200,5 K in Hg^{197} 134 L_I				

Tabelle 1 (2. Fortsetzung)

β-Energie keV	Interpretation	Intensität β	Intensität γ	Konversionskoeffizient	Multipol
185,95	200,5 L_I γ-Intensität	20	1300		
186,88	L_{II} aus theor.	120			
188,57	L_{III} Konversions-	50			$E\,2$
197,20	M_{II} koeffizient				
197,64	M_{III}				
199,81	N				
180,76	261,5 K				
247,21	L_I				
247,9	L_{II}				
249,1	L_{III}				*)
258,13	M_I				$M\,1+E\,2$
261,0	N				
237,77	318,5 K	130			
304,06	$L_{I/II}$	67			$M\,4$
315,83	M	25			
	Unzugeordnete Linie				
358,8	439,5 K?				

2. β-Spektroskopie

Die aus Bestrahlungen in Harwell gewonnenen Präparate ergaben in ersten Messungen Konversionslinien von bisher unbekannten γ-Übergängen. Im Photometerstreifen eines Filmes aus dem Halbkreisspektrographen, der in Figur 4 wiedergegeben ist, sieht man zum Beispiel deutlich die L-Konversionsgruppen der γ-Linien von 200,5 keV und 207,1 keV, die von Joly et al.[7]) nicht angegeben wurden. In Figur 5 sind Teile eines

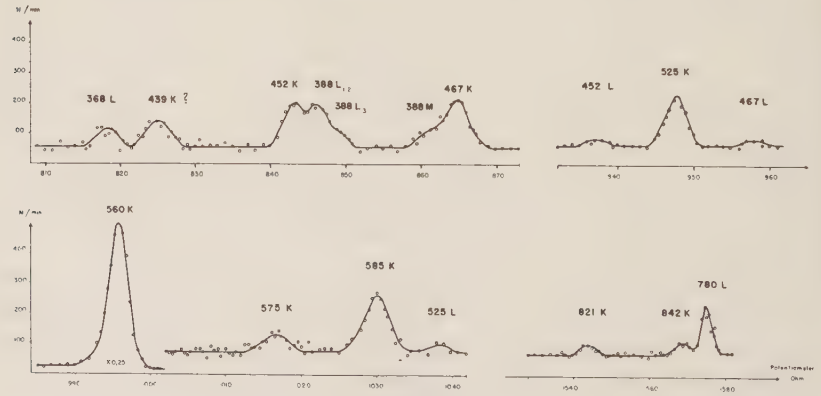


Fig. 5.

Teile eines im doppelfokussierenden Spektrometer des Nobelinstitutes gemessenen Spektrums (33-MeV-Bestrahlung für $Hg^{195}-Au^{195}$-Aktivität).

Spektrums dargestellt, das im doppelfokussierenden Spektrometer des Nobelinstitutes in Stockholm gemessen wurde und das eine ganze Reihe neuer Konversionslinien enthält.

In Tabelle 1 sind die Angaben über die bisher gefundenen Konversionslinien zusammengestellt. Die aus dem Grundzustand 3/2 von Hg^{195} erreichten Niveaus zerfallen mit einer zusammengesetzten Halbwertszeit (HWZ) von 9,5 h + 40 h. Die Konversionslinien der in Hg^{195} konvertierten γ-Übergänge und eine Reihe von Linien in Au^{195} besitzen eine reine HWZ von 40 h.

Die Zuordnung der Konversionslinien zu einem bestimmten Zerfall erfolgte aus genauen Energiebestimmungen (K-L-M-Differenzen), HWZ-Messungen und Koinzidenzmessungen. Die Koinzidenzmethode war unentbehrlich für die Zuordnung von γ-Linien, von denen nur die K-Konversionslinie gefunden wurde.

Die Intensitätsangaben beziehen sich auf den Zustand des Gleichgewichts, also auf einen Zeitpunkt, bei dem die Aktivität von 9,5 h HWZ abgeklungen ist.

Die angegebenen Multipolordnungen der Übergänge erhält man aus einem Vergleich der gemessenen Konversionkoeffizienten α_K oder der Intensitätsverhältnisse der L-Konversionslinien mit den von Rose[23]) und Sliv[24]) berechneten Werten.

Die Suche nach einem Positronenspektrum war erfolglos. Nach der von Joly et al.[7]) und Houriet[33]) angegebenen Energiedifferenz zwischen den Grundzuständen von Hg^{195} und Au^{195} dürfte jedoch ein solches vorhanden sein.

Das γ-Spektrum wurde nicht neu gemessen. Die zu den neu gefundenen Konversionslinien gehörenden γ-Linien sind gegenüber den bereits bekannten nur von schwacher Intensität und fallen meistens in einen Bereich, in dem sie von den stärkeren Linien ohnehin nicht getrennt werden können. Wo es möglich war, haben wir mit den aus Koinzidenzmessungen bestimmten γ-Intensitäten der neuen Linien die von Joly *et al.*[7]) angegebenen γ-Intensitäten der damals bekannten Linien korrigiert.

3. β–γ-Koinzidenzen

Die Einordnung der neu gefundenen γ-Übergänge in das Zerfallsschema erfolgte in erster Linie auf Grund von e^--γ-Koinzidenzmessungen, die im folgenden näher beschrieben werden sollen. (Die Konversionslinien einer γ-Linie von 180 keV werden in dieser Arbeit mit 180 K, 180 L, $\cdots$ bezeichnet, analog die Konversionslinien anderer γ-Energien.)

a) *180 K-γ-Koinzidenzen*

Wir finden 180 K ausser mit einer γ-Linie von 600 keV mit einem γ-Übergang von 900 $\pm$ 20 keV in Koinzidenz. Aus den Konversionslinien

ist eine γ-Linie von 930 $\pm$ 2 keV bekannt, die mit der in der Koinzidenzmessung gefundenen Linie übereinstimmen muss. Die Tatsache, dass die beiden angegebenen Energien nicht übereinstimmen, lässt sich dadurch erklären, dass noch eine weitere γ-Linie von ähnlicher Energie mit 180 K in Koinzidenz sein muss. Wir nehmen an, dass auch die im Konversionsspektrum enthaltene Linie von 842 $\pm$ 2 keV mit 180 K in Koinzidenz ist.

b) *262 K, L-γ- und 821 K-γ-Koinzidenzen*

Da zu erwarten ist, dass das bekannte Energieniveau von 262 keV in Au^{195} ausser vom Au-Isomer auch von einer andern Seite erreicht wird, haben wir in den Linien 262 K und 262 L sorgfältige Koinzidenzmessungen ausgeführt. In den Koinzidenzspektren erscheint eindeutig eine γ-Linie von $\sim$ 800 keV. Weitere γ-Linien sind möglich. Koinzidenzmessungen in der Linie 821 K zeigen, dass diese ihrerseits mit γ 262 keV in Koinzidenz ist. Die Auswertung der Messungen ergibt, dass $\sim$ 1% der Gesamtintensität von γ 262 keV von der γ-Linie von 821,0 $\pm$ 1,5 keV geliefert wird.

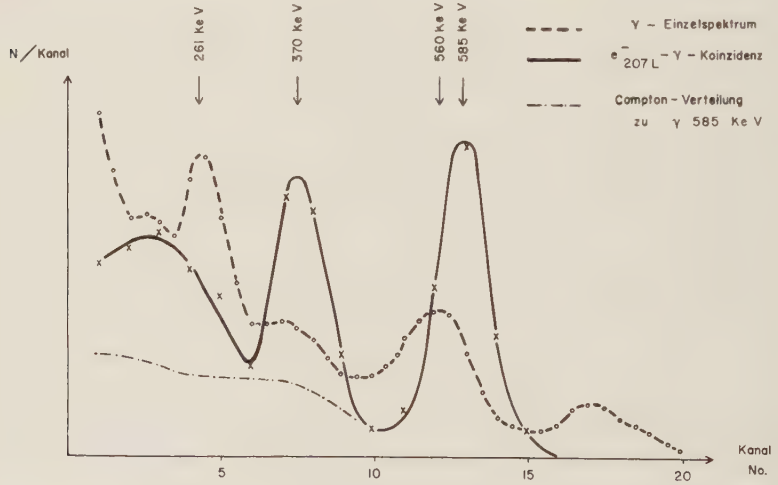


Fig. 6.
Koinzidenzmessung 207 L-γ.

c) *207 K, L, M-γ-Koinzidenzen*

Als wesentliches Problem stellte sich die Einordnung der γ-Linie von 207,1 $\pm$ 0,2 keV in das Zerfallsschema. In Figur 6 sind ein Koinzidenzspektrum 207 L-γ und das in gleicher Geometrie gemessene γ-Einzelspektrum dargestellt. Analoge Spektren erhält man bei 207 K-γ und 207 M-γ. Die Analyse dieser Messungen zeigt, dass die Konversionslinien von γ 207 keV mit γ-Linien von 580 $\pm$ 20 keV und 370 $\pm$ 30 keV in Koinzidenz sind.

d) *368 K-γ- und 386 K/388 K-γ-Koinzidenzen*

Als deutliche höchste γ-Linie, die mit 368 K in Koinzidenz ist, stellt sich eine γ-Linie von 400 ± 30 keV heraus. Sodann findet man eine Photospitze bei 210 ± 20 keV, die mit der γ-Linie von 207 keV übereinstimmen dürfte.

Im Linsenspektrometer erscheint bei einer β-Energie von 304 keV eine einzelne Linie, die sich, wie man aus Messungen an Instrumenten besserer Auflösung weiss, aus mindestens drei Komponenten, nämlich 318 L, 386 K und 388 K, zusammensetzt. Koinzidenzmessungen in 318 K zeigen, dass diese Linie keine messbaren Koinzidenzen liefert, so dass auch 318 L keine Koinzidenzen beitragen wird. Welche von den Linien 386 K und 388 K die an der Stelle 304 keV gemessenen Koinzidenzen liefert oder wie diese Koinzidenzen auf die beiden Linien aufzuteilen sind, ist vorerst nicht zu entscheiden. Man findet die Gruppe von Konversionslinien bei 304 keV in Koinzidenz mit γ-Linien von 560 ± 40 keV, 370 ± 40 keV und 210 ± 20 keV. Gleiche Koinzidenzspektren findet man auch in einer β-Linie bei 373 keV, wo sich die Konversionslinien 452 K, 386 L und 388 L (im Linsenspektrometer nicht getrennt) befinden.

e) *173 K-γ-Koinzidenzen*

In den Halbkreisspektrographen-Filmen wurden schwache Konversionslinien eines γ-Überganges von 172,6 ± 0,3 keV gefunden. Im Linsenspektrometer waren diese Linien nicht sichtbar. Wir haben jedoch an der Stelle, an der die Linie 173 K sich befinden sollte, Koinzidenzen mit einer γ-Linie von 380 ± 20 keV gefunden.

f) *560 K-, 467 K-, 526 K- und 680 K-γ-Koinzidenzen*

Die Koinzidenzmessungen in 560 K liefern eine Photospitze bei 690 ± 30 keV und eine solche bei 510 ± 30 keV. Umgekehrt zeigen die Koinzidenzen in 467 K und 526 K gleiche Impulsverteilungen mit einer Photospitze bei 560 ± 20 keV. Auch 680 K weist bei schlechter Statistik deutliche Koinzidenzen mit 560 ± 30 keV auf. Andere γ-Linien von messbarer Intensität sind in diesen Koinzidenzspektren nicht enthalten.

4. β–β-Koinzidenzmessungen

Für die Erstellung des Zerfallsschemas ist es wichtig zu wissen, in welches Niveau die γ-Linie von 207 keV, die nach den β–γ-Koinzidenzmessungen mit γ-Linien von > 350 keV in Koinzidenz ist, führt. In Uppsala haben wir am β–β-Koinzidenzspektrometer von GERHOLM[18]) Koinzidenzmessungen zwischen 180 K und 207 L versucht. Als Vergleichs-

messung wurde die bekannte Koinzidenz $180\,K$–$600\,K$ benützt. Das Ergebnis war negativ. Mit unserer unter II 4 beschriebenen β-β-Koinzidenzanordnung konnten wir später ebenfalls zeigen, dass $180\,K$ und $207\,L$ nicht in Koinzidenz sind. Dasselbe Resultat lieferten auch $180\,K$-γ-Koinzidenzmessungen. Etwas schwieriger war abzuklären, ob die γ-Linien von 61 keV und 207 keV in Kaskade sind. Dass dies nicht der Fall ist, erhält man aus der Koinzidenzmessung $61\,L$-γ und Intensitätsüberlegungen. Wir haben aber auch in direkten Koinzidenzmessungen $207\,L$-β gezeigt, dass $207\,L$ und $61\,L$ nicht in Koinzidenz sind. Im Linsenspektrometer sind die Konversionslinien $207\,L$ und $200\,M$ nicht getrennt. Die letzte Linie ist aber vermutlich mit $57\,L$ und $61\,L$ in Koinzidenz. Die gemessenen Koinzidenzzahlen genügen aber nicht, um eine Koinzidenz $207\,L$–$61\,L$ zu erklären.

5. Zerfallsschema Hg–Au^{195}

Das Niveauschema von Au^{195} wurde in den Grundzügen schon von JOLY et al.[7]) angegeben. Wir haben inzwischen eine ganze Reihe neuer Linien gefunden. Notwendigerweise führt dies zur Einführung neuer Energieniveaus. Die Überlegungen, die nun dargelegt werden sollen, haben zu dem in Figur 7 dargestellten Zerfallsschema geführt.

Die Energieniveaus von 61, 241, 262, 318, 841, 878 und 1345 keV mit den von JOLY angegebenen γ-Übergängen waren bereits gesichert und ihre Energie bis auf geringfügige Korrekturen genau bestimmt. In diesen Rahmen passt nur die neu gefundene Linie von $200{,}5 \pm 0{,}5$ keV als Übergang vom Niveau 262 keV zum Niveau 61 keV. Das von JOLY angegebene Niveau von 1211 keV erfährt eine Verschiebung. Die mit $180\,K$ in Koinzidenz gemessene höhere γ-Linie wurde zu $930{,}4 \pm 1{,}7$ keV bestimmt. Dies führt auf ein Niveau von 1172 keV. Die früher gefundene γ-Linie von 1150 keV teilt sich nach den neu gemessenen Konversionslinien in zwei Übergänge von 1110 ± 2 keV und 1172 ± 3 keV auf, die einerseits ins Niveau 61 keV, andererseits direkt in den Grundzustand führen.

Die mit $262\,K$ koinzidierende Linie von 821 keV ergibt ein neues Energieniveau von 1082 keV, von wo über eine γ-Linie von $842{,}2 \pm 1{,}5$ keV das Niveau von 241 keV und über eine nur im Linsenspektrometer gemessene Linie von 1020 ± 10 keV das Niveau von 61 keV erreicht wird. Die Niveaus von 61, 241, 841, 1082 und 1172 keV werden direkt durch Elektroneneinfang aus dem Grundzustand von Hg^{195} gespeist, wie man aus der zusammengesetzten HWZ von 9,5 h + 40 h der aus ihnen führenden Linien entnimmt.

Die Konversionslinien von γ 207 keV besitzen zusammengesetzte HWZ, sind aber auch in Koinzidenz mit Linien von reiner 40 h – HWZ.

Aus der Analyse der Koinzidenzmessungen in der Linie 207 L entnimmt man als numerisches Resultat:

$$\lambda_{580}(1-\varkappa_{580}) = 0{,}8 \pm 0{,}1$$
$$\lambda_{370}(1-\varkappa_{370}) = 0{,}35 \pm 0{,}06$$

λ_i = Verzweigungsverhältnis.
$\varkappa = N_e/N_{\mathrm{Tot}}$ (Konversionskoeffizient).

Man sieht daraus, dass die im Koinzidenzspektrum gefundenen γ-Linien entweder selbst miteinander in Koinzidenz sind oder dass mindestens eine davon mehrfach sein muss und die Komponenten untereinander koinzidieren. Aus der Koinzidenzmessung 368 K-γ weiss man, dass

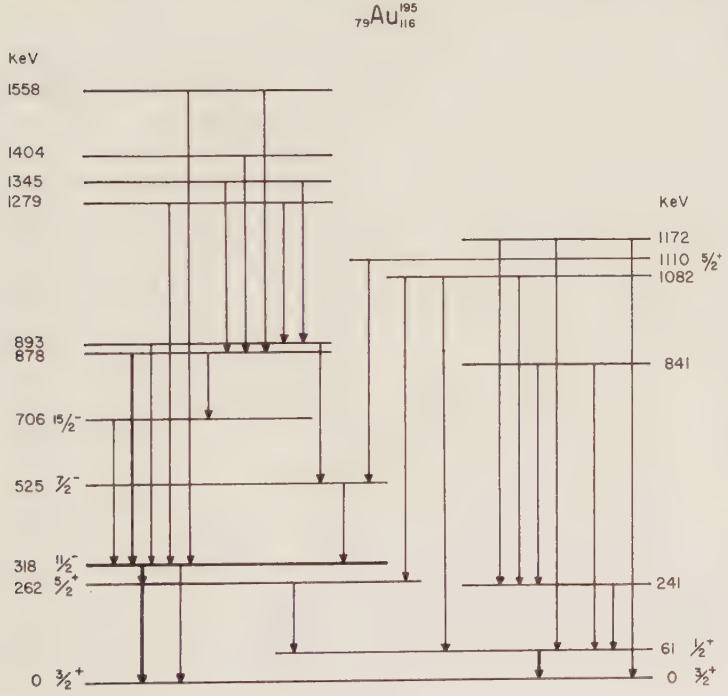


Fig. 7.

Niveauschema von Au^{195}: die links bezeichneten Niveaus werden vom Isomer Hg^{195m}, die rechts bezeichneten Niveaus vom Grundzustand Hg^{195} angeregt.

γ 368 keV mit einem γ-Übergang von 400 $\pm$ 30 keV, nicht aber mit $\sim$ 580 keV in Koinzidenz ist. Daraus schliesst man, dass die Linie von 370 keV in der Koinzidenzmessung 207 L doppelt ist und deren Komponenten miteinander in Koinzidenz sind. Die Halbwertszeiten der beteiligten Linien zeigen, dass der γ-Übergang von 207 keV der Linie von 368 keV

folgen muss und auch die Linie von 580 keV parallel zu γ 368 keV der Linie 207 keV vorangeht. Die Linie von $\sim$ 400 keV, die vor dem Übergang von 368 keV steht, ist übrigens auch mit einer γ-Linie von $\sim$ 560 keV in Koinzidenz. Die letztere ist leicht als Crossover von 368,4 keV und 207,1 keV, das heisst die aus dem Einzelspektrum bekannte Linie von 575,2 $\pm$ 1,0 keV zu identifizieren. Für die mit γ 207 keV koinzidierende Linie von $\sim$ 580 keV bleibt also nur noch die Linie von 584,8 $\pm$ 1,0 keV. Die Intensität der Linie von 207 keV wird vermutlich ganz von den beiden Übergängen von 585 keV, welcher die zusammengesetzte Halbwertszeit liefert, und 368 keV aufgebracht. Es bleibt noch abzuklären, welche Linie oberhalb von γ 368 keV steht.

Die Koinzidenzmessung 172K-γ zeigt, dass 172K mit einer γ-Linie von 380 $\pm$ 20 keV koinzidiert. Andererseits findet man in den Gruppen 318L-386K- 388K und 452K- 386L- 388L Koinzidenzen mit γ-Übergängen von 560 $\pm$ 30 keV, 370 $\pm$ 40 keV und 210 $\pm$ 20 keV. In der letztgenannten Koinzidenzmessung stehen die Intensitäten der im Koinzidenzspektrum enthaltenen γ-Linien von 560 keV und 370 keV in einem Verhältnis von 0,6:0,4. Die γ-Intensitäten selbst lassen sich unter Benützung der Koinzidenzmessung 207L-γ bestimmen. Aus den Intensitätsverhältnissen der Konversionselektronen von γ 387,6 keV ergibt sich, dass diese Linie den Charakter eines elektrischen Quadrupols besitzt. Aus der Intensität der Konversionslinien kann man mit Hilfe der theoretischen Konversionskoeffizienten die γ-Intensität dieses Überganges bestimmen. Die Gesamtintensität dieser Linie wird aber viel grösser als die Summe der Intensitäten von γ 368 keV und γ 575 keV. Als die mit 368 keV koinzidierende Linie ergibt sich demnach die γ-Linie von 386 keV. Die γ-Linien 172,6 $\pm$ 0,3 keV und 387,6 $\pm$ 0,4 keV bilden eine Kaskade parallel zu γ 560,5 $\pm$ 0,6 keV, wobei γ 172 als schwächere Linie über γ 388 zu setzen ist.

Wir haben nun einerseits eine γ-Kaskade von 386,0 $\pm$ 0,5 keV – 368,4 $\pm$ 0,6 keV – 207,1 $\pm$ 0,2 keV, die übrigens in γ 962,5 $\pm$ 2 keV einen Crossover besitzt, andererseits eine γ-Kaskade 585 keV – 207 keV in das Zerfallsschema einzuordnen. Es ist gesichert, dass γ 61 keV und γ 180 keV nicht mit γ 207 keV in Koinzidenz sind. γ 207 keV kann also entweder direkt in den Grundzustand oder auf das isomere Niveau von 318 keV führen. Es bestehen aber zwei Crossovers, nämlich γ 575 keV und γ 962 keV, die aus Niveaus, die mindestens den Spin 9/2 besitzen, auf das gleiche Niveau wie γ 207 keV führen. Der Grundzustand von Au^{195} hat den Spin $3/2^+$. Diese Crossovers müssten also den Charakter von Oktupolen besitzen, die aber mit magnetischen Dipolen oder Mischungen von magnetischen Dipolen mit elektrischen Quadrupolen, wie sie die γ-Übergänge von 368 keV und 386 keV darstellen, nicht in den gemessenen Intensitäten konkurrieren können. Die Linie von 207 keV führt also auf das

isomere Niveau von 318 keV. Damit ergeben sich neue Energieniveaus: von 525 keV, das durch Elektroneneinfang nicht erreicht wird; von 706 keV, das ausser durch γ 173 keV entweder durch Elektroneneinfang aus dem Hg-Isomer oder durch unerkannt gebliebene γ-Linien oder durch beides gespeist wird; von 893 keV, das fast ausschliesslich von höhern Niveaus beliefert wird; von 1279 keV (Elektroneneinfang aus dem Hg-Isomer); von 1110 keV mit Speisung aus dem Grundzustand von Hg^{195}. Letzteres Niveau könnte einen direkten Übergang in den Grundzustand besitzen, der durch die mit γ 61 keV in Koinzidenz stehende Linie von 1110 keV verdeckt würde.

Die β–γ-Koinzidenzen in den Konversionslinien von γ 207 keV und γ 526 keV liefern unterschiedliche Koinzidenzspektren; insbesondere fehlen Koinzidenzen 526 K-γ 370 keV. Die γ-Linie von 526 keV kann also nicht der direkte Übergang vom Niveau von 525 keV in den Grundzustand sein. Ausserdem besitzt γ 526 keV, wie auch γ 467 keV und γ 680 keV eine reine Halbwertszeit von 40 h. Die mit den drei γ-Linien in Koinzidenz gefundene γ-Linie von 560 $\pm$ 30 keV muss identisch mit γ 560,5 keV sein. Man erhält damit drei Energieniveaus von 1345 keV, 1404 keV und 1558 keV. Aus letzterem Niveau führt ein direkter γ-Übergang von 1242 $\pm$ 5 keV auf das isomere Niveau von Au^{195}. Aus den andern zwei Niveaus gehen möglicherweise ebenfalls direkte Übergänge in das Niveau von 318 keV, deren γ-Linien oder Konversionslinien aus Intensitätsgründen oder Zusammenfallen mit der γ-Linie von 1020 $\pm$ 10 keV (9,5 h + 40 h) nicht gefunden werden.

B. Hg^{193}–Au^{193}

1. Frühere Arbeiten

Die ersten Resultate über den Zerfall von Hg^{193} sind in der bereits erwähnten Arbeit von GILLON et al.[12]) über neutronenarme Hg-Au-Isotope enthalten. Darin werden die tiefsten Energieniveaus von Au^{193} angegeben. Wir selbst haben bereits einige vorläufige Mitteilungen über den gleichen Zerfall publiziert[8])[9])[10])[11]). Unsere Ergebnisse sollen nachfolgend ergänzt und zusammengestellt werden.

2. β-Spektroskopie

a) *Konversionsspektren*

Wir haben die Konversionsspektren mit Linsenspektrometer, Halbkreisspektrographen und im Bereich $>$ 500 keV mit den doppelfokussierenden Spektrometern in Schweden ausgemessen. Da der Bereich $<$ 300 keV bereits gut bekannt war, haben wir insbesondere nach Linien höherer Energie gesucht. In Figur 8 sind Teile des gemessenen Spektrums

*

abgebildet. Die Konversionslinien liegen bis zu einer Energie von etwa 1300 keV ziemlich dicht beisammen. Selbst bei dem guten Auflösungsvermögen des Halbkreisspektrographen fallen an mehreren Stellen Konversionslinien zusammen.

In Tabelle 2 sind die Angaben über die gefundenen Konversionslinien zusammengestellt. Die Energien entsprechen den zuverlässigsten Werten aus verschiedenen Messungen. Die Halbwertszeit der dem Zerfall Hg-Au^{193} zugeschriebenen Linien haben wir zu

$$\tau_{1/2} = 11 \pm 1 \text{ h}$$

gemessen. Die von GILLON für den Grundzustand von Hg^{193} gefundene

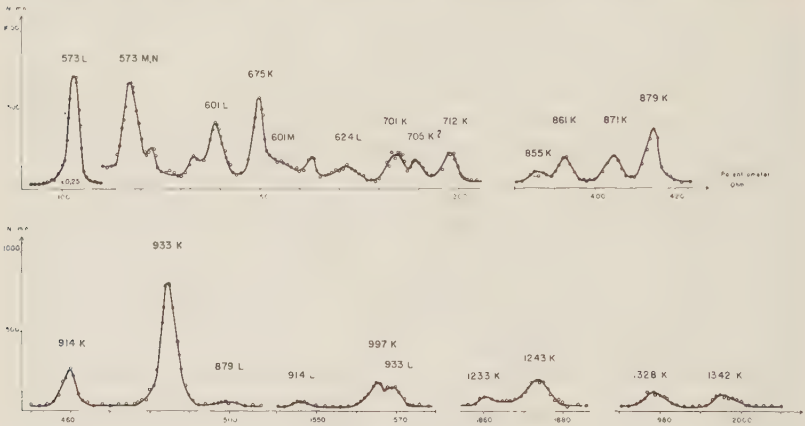


Fig. 8.

Teile eines im doppelfokussierenden Spektrometer des Nobelinstitutes gemessenen Spektrums (55-MeV-Bestrahlung für Hg^{193} – Au^{193}-Aktivität).

Halbwertszeit von 6 h konnten wir in keiner Linie $>$ 300 keV direkt feststellen. Unsere Messungen begannen in der Regel $\sim$ 10 h nach dem Ende der Bestrahlung. An den doppelfokussierenden Spektrometern konnten wir der langen Messzeiten wegen keine Halbwertszeit-Messungen durchführen. Immerhin ergab ein Vergleich der Messungen in Schweden, die unmittelbar nach den Bestrahlungen begonnen werden konnten, mit denjenigen in Zürich, dass eine Konversionslinie von 681,1 keV eine zusammengesetzte Halbwertszeit besitzen muss und demnach aus dem Grundzustand von Hg^{193} gespeist wird. Im Zustand des Gleichgewichts gibt die Intensität der γ-Linie von 101 keV in Hg^{193} ($M4$) eine obere Grenze für die Intensität der Linien, die aus dem Grundzustand von Hg^{193} angeregt werden können. Alle starken γ-Linien im Au^{193} und deren Koinzidenzpartner werden demnach durch Elektroneneinfang oder Positronenzerfall aus dem Isomer Hg^{193m} angeregt.

Tabelle 2

Energie	Interpretation	Bemerkungen	β-Intensität	Multipol
		In Hg^{193} konvertierte Linien		
24,61	39,5 L_I			*)
25,27	L_{II}			
35,87	M_I			
38,69	N_I			
18,48	101,5 K	mit Au^{193} 32 L_{II}		
86,62	L_I			*)
87,27	L_{II}		8540	
89,17	L_{III}			
97,97	M_I			
98,66	M_{III}			
100,9	N			
		In Au^{193} konvertierte Linien		
17,87	32,2 L_I			
18,48	L_{II}	mit Hg^{193} 101 K		
20,26	L_{III}			E 3
28,98	M_{II}			
29,39	M_{III}			(s. S. 362)
29,90	M_{IV}			
31,54	N			
23,86	38,2 L_I	HWZ		
24,48	L_{II}	zusammengesetzt*)		*)
26,28	L_{III}			
34,79	M_I			
35,02	M_{II}			
35,45	M_{III}			
37,55	N			
85,2	165,9 K			
106,02	186,8 K	HW Z zus. ges. *)		
172,02	L_I	mit Pt^{193} 186 L		
137,3	218,0 K		1250	
203,37	L_I		900	E 2
204,07	L_{II}			
205,85	L_{III}	mit Au^{193} 220 L_{II}	680	
214,7	M			
216,85	N			
139,01	219,7 K		750	
205,44	L_I		680	E 2
206,04	L_{II}	mit Au^{193} 218 L_{III}		
207,08	L_{III}		174	
216,4	M			
177,0	257,4 K		32000	
242,9	L_I		6000	
243,5	L_{II}			
245,4	L_{III}			
254,2	M		1600	
256,4	N			

*) Vgl. GILLON et al.[12]).

Tabelle 2 (1. Fortsetzung)

Energie	Interpretation	Bemerkungen	β-Intensität	Multipol
200,15	280,8 K			
266,62	L_{I}			
200,85	281,4 K		220 (mit 280,8 K)	
267,52	L_{I}	mit Pt^{193} 267 N		
278,71	M	mit Au^{193} 290 L_{III}		
210,0	290,5 K		390	
276,64	L_{I}		40	
278,71	L_{III}	mit Au^{193} 281,4 M		
287,7	M			
219,06	299,4 K		100	
285,55	L_{I}			
261,22	341,9 K		207	
(326,97)	(L_{I})	in Au^{193} 408 K		
330,0	L_{III}			
338,55	M			
264,90	345,4 K	mit Pt^{193} 267 M	120	
331,08	L_{I}		25	
341,61	M_{I}	doppelt?		
345,03	N			
280,04	360,5 K		26	
346,41	L_{I}			
283,80	364,4 K		118	
350,13	L_{I}	doppelt?		
350,72	L_{II}	doppelt?		
301,09	381,8 K			
367,55	L_{I}			
301,87	382,6 K		740 mit 381,8 K	
368,36	L_{I}		124 mit 381,8 L	
313,40	394,1 K		395	
379,83	L_{I}		158	
390,71	M_{I}			
326,97	407,8 K	mit Au^{193} 342 L_{I}	1300	
393,47	L_{I}			
394,00	L_{II}		} 300	E 2
395,87	L_{III}		115	
404,61	M		97	
381,40	462,0 K		143	
447,72	L			
406,97	487,6 K		86	
473,60	L_{I}			
419,0	499,7 K		350	
485,5	L_{I}		35	
429,5	510,2 K		70	
495,1	L_{I}			
454,7	535,4 K		150	
520,8	L_{I}			

Tabelle 2 (2. Fortsetzung)

Energie	Interpretation	Bemerkungen	β-Intensität	Multipol
456,6	537,3 K		210	
523,0	L_I			
492,9	573,6 K		1000	
559,3	L_I		216	
570,1	M		62	
574,2	N		10	
520,2	601,0 K		190 mit 535 L/537 L	
586,2	L		31	
543,0	624 K			
594,4	675,1 K		38	
660,2	L_I	doppelt?	20	
620,6	701,3 K	} doppelt?	19	
687,2	L_I	} doppelt?	9	
631,2	712 K			
681,1	761,8 K	HWZ		
747,1	L_I	zusammengesetzt		
774,6	855,3 K			
780,5	861,2 K		24	
790,2	870,8 K		28	
798,0	878,7 K		50	
864,5	L_I		6	
833,1	913,8 K		36	
900,7	L_I		7	
852,4	933,1 K		149	
918,9	L_I		23	
916,2	996,9 K		22	
982,4	L_I		5	
959,0	1040 K			
997,5	1078 K			
1031,8	1113 K		12	
1098,3	L_I	doppelt?	13	
1094,3	1175 K		17	
1152,2	1233 K			
1162,3	1243 K		29	
1229,0	L_I			
1247,6	1328 K	doppelt?	17	
1315,0	L_I	doppelt?	6	
1262,2	1343 K	doppelt?	12	
1329,6	L_I	doppelt?	6	
1407,8	1489 K		11	
1585	1646 K		5	

Unsere Messungen enthalten gegen 100 weitere unzugeordnete schwache Konversionslinien.

Die Intensitätsangaben der Linien > 500 keV entstammen den Messungen in den doppelfokussierenden Spektrometern, diejenigen der Linien > 200 keV aber < 500 keV den Messungen aus dem Halbkreisspektrographen. Die Intensitäten einiger Konversionslinien < 200 keV sind den Messungen im Linsenspektrometer entnommen.

b) *β^+-Spektren*

Erstmals wurde von uns im doppelfokussierenden Spektrometer des Nobelinstitutes, nachher auch im Linsenspektrometer in Zürich das Positronenspektrum von Quellen aus 55-MeV-Bestrahlungen gemessen. Die

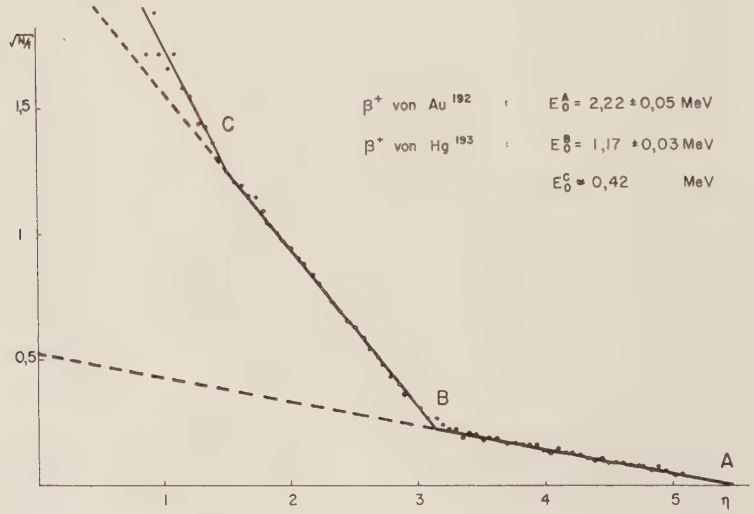


Fig. 9.

Kurie-Plot des β^+-Spektrums (55-MeV-Bestrahlung; siehe auch Tabelle 3).

beiden Ergebnisse stimmen überein. In Figur 9 ist das Kurie-Plot des gemessenen Spektrums wiedergegeben. Eine Zusammenstellung der Daten über das β^+-Spektrum ist in Tabelle 3 enthalten. Die Zuordnung der Spektren erfolgte aus Halbwertszeit- und β^+-γ-Koinzidenzmessungen.

Tabelle 3

Grenzenergie MeV	HWZ h	Int. β^+	Int. K-Einf.	Int. L-Einf.	Int. Total	Zuordnung	log ft
$2{,}22 \pm 0{,}05$	< 11	175	1060	130	1365	Au^{192}	
$1{,}17 \pm 0{,}03$	11	578	29000	4000	33600	Hg^{193}	7,4
0,42	11						
Intensität			$933\ K + 914\ K$		185		

Das Spektrum mit einer Grenzenergie $E_0 = 1{,}17$ MeV muss dem Übergang $Hg^{193\,m}$–$Au^{193\,m}$ zugeordnet werden. Das tiefste Spektrum von $\sim$ 420 keV ist mehrfach, da in Au^{193} eine grosse Zahl von Niveaus bestehen, die durch β^+-Zerfall erreicht werden können.

3. γ-Spektroskopie

Das γ-Spektrum von Au^{193} besteht aus so vielen Linien, dass von Messungen mit kleinen Szintillationskristallen kein befriedigendes Resultat erwartet werden darf. D. MAEDER hat uns deshalb eine provisorische Anordnung mit einem zylindrischen NaI (Tl)-Kristall von 12,7 cm Durch-

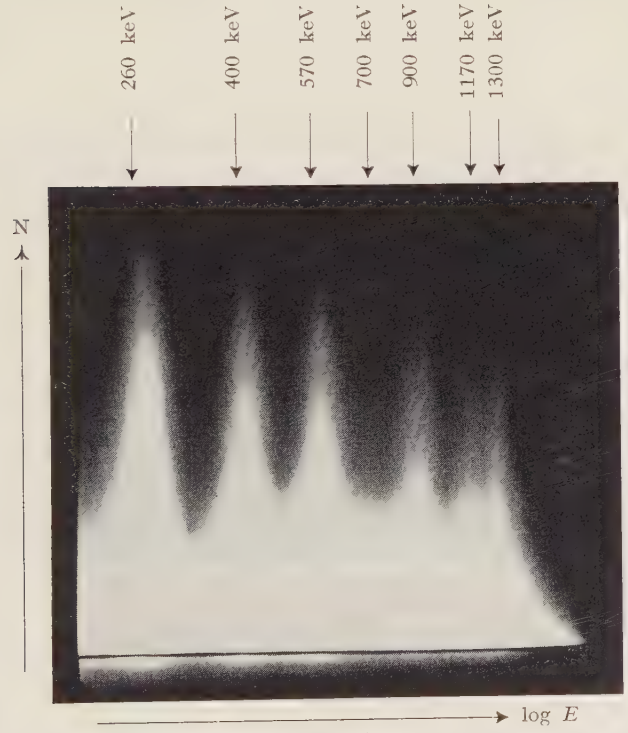


Fig. 10

γ-Spektrum von $Hg^{193} - Au^{193}$ in logarithmischem Energie-Maßstab.

messer und 10 cm Länge und seinen γ-Impulsspektrographen zur Verfügung gestellt[14]). Wir haben damit das γ-Spektrum von Hg-Au^{193} gemessen. Eine solche Messung ist in Figur 10 dargestellt. Die Energie ist in logarithmischem Maßstab aufgetragen[27]). Der Comptoneffekt beträgt für eine γ-Energie von 1,2 MeV 25%, für 0,6 MeV $\sim$ 10% der totalen An-

sprechwahrscheinlichkeit. Man unterscheidet trotz der grossen Anzahl von γ-Linien, die im Spektrum enthalten sein müssen, deutliche Spitzen, die den aus dem Konversionsspektrum bekannten intensivsten γ-Linien entsprechen.

Die in Tabelle 4 für die einzelnen Spitzen angegebenen Intensitäten sind mit einem Fehler von $\sim 20\%$ behaftet.

Tabelle 4

Energie keV	Intensität
260	130000
400	73000
570	51000
700	8000
900	36000
>900	50000

Zur Bestimmung der höchsten im Zerfall auftretenden γ-Strahlung wurde eine Aufnahme mit einem Absorber von 16 mm Pb gemacht. Als Grenze für die energiereichste beobachtete γ-Linie erhält man daraus $E_{max} = 1800 \pm 100$ keV.

4. γ–γ-Koinzidenzen

Nach der von MAEDER beschriebenen Methode[28]) wurden in Hg–Au^{193} γ–γ-Koinzidenzen als erste Orientierung über mögliche Kaskaden gemessen. In einem der Szintillationszählkanäle wurde der bereits für die γ-Einzelspektren benützte grosse NaI (Tl)-Kristall verwendet. Figur 11 zeigt eine so erhaltene Aufnahme. Abszisse und Ordinate entsprechen der linearen Energieskala der beiden Zählkanäle. Die horizontale Energieskala gehört zum Kanal mit dem grossen Kristall, in welchem die weicheren γ-Strahlen mit einem Absorber von 2 mm Pb absorbiert wurden. Eine Koinzidenz zwischen zwei Impulsen erscheint als Punkt mit den den Impulshöhen entsprechenden Koordinaten. Man unterscheidet auf der Photographie deutlich einige markante Gruppen von Koinzidenzen. Insbesondere erkennt man (angenäherte Energien in keV):

550 – 550
400 – 930, 400 – 1300
400 – 220, 400 – 400, 400 – 600
350 – 500
220 – 700

Diese Resultate sind zu wenig genau, um daraus entnehmen zu können, welche einzelnen Übergänge diese Koinzidenzen liefern. Immerhin erhält

man daraus wertvolle Hinweise, in welchen Bereichen des Konversionsspektrums β–γ-Koinzidenzmessungen versucht werden sollen.

5. β–γ-Koinzidenzen

Die β-γ-Koinzidenzmessungen dienen zur Verfeinerung der aus den γ–γ-Koinzidenzmessungen erhaltenen Resultate. Es ist jedoch im Zerfall von Hg^{193}–Au^{193} kaum mehr möglich, im Linsenspektrometer eine einzelne Konversionslinie einzustellen. Vielmehr misst man meistens Koinzidenzen mit einer Gruppe von Konversionslinien, in der gegebenenfalls

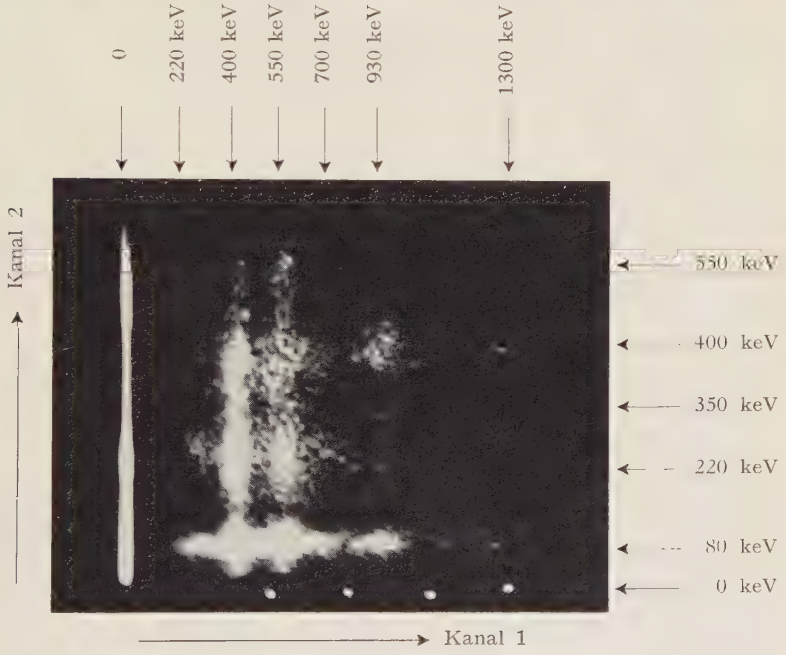


Fig. 11.
γ-γ-Koinzidenzmessung in $Hg^{193}-Au^{193}$.

eine bestimmte Linie die wesentliche Intensität liefert. Aus den Koinzidenzmessungen erhält man deshalb nur unsichere numerische Resultate für Verzweigungsverhältnisse und Konversionskoeffizienten. Für die Aufstellung des Zerfallsschemas sind sie aber immer noch von grossem Nutzen.

Nachstehend sind die in den Koinzidenzspektren mit den verschiedenen wichtigeren Gruppen von Konversionslinien in Koinzidenz gefundenen γ-Übergänge oder Gruppen von γ-Übergängen in Form einer Tabelle dargestellt (Tabelle 5).

6. *Isomer* Au^{193m}

Nach der in den tiefsten Niveaus gefundenen Analogie der Zerfallsschemata von Au^{197}, Au^{195} und Au^{193} war zu erwarten, dass Au^{193} wie schon Au^{197} und Au^{195} ein Isomer besitzt. GILLON *et al.*[12]) haben denn

Tabelle 5

Konversionslinien	Photospitzen im koinzidierenden γ-Spektrum
32 *L*, *M*	260
38 *L*, *M*	220, 770, 1050
186 *K*	570, 850
218 *K* + 220 *K*	290 ?
281 *K* + 218 *L* + 220 *L* + 290 *K*	400, 600, 750
342 *K* + 345 *K*	220, 390, 500, 700, 900 ?
290 *L* + 360 *K* + 364 *K*	220 ?, 380, 460 + evt. höhere
381 *K* + 382 *K*	220, 380, 500 + evt. höhere
394 *K*	220, 380, 600, 750
408 *K*	930, 1200 + evt. niedere
500 *K*	380, 600 + evt. niedere
535 *K* + 537 *K*	570, höhere unsicher
573 *K*	540, 900, evt. 1150
914 *K*	570
933 *K*	410
879 *K*	450 ?, 560 ?

auch angenommen, dass die von ihnen gefundene γ-Linie von 32,2 keV ein $E3$ sein müsse, ohne allerdings die Lebensdauer des entsprechenden Niveaus zu kennen oder über die erwähnte Linie mehr zu wissen, als dass es ein elektrischer Multipol sein müsse. Wir haben bereits früher die Halbwertszeit von Au^{193m} zu

$$\tau_{1/2} = 3{,}8 \pm 0{,}3 \text{ sec}$$

bestimmt[8]). Dieser Wert ist inzwischen von FISCHER[29]) bestätigt worden. Wir haben gezeigt, dass γ 257,4 zum Isomer gehört und diese Linie mit γ 32,2 in Koinzidenz ist. Weiterhin hat J. H. BRUNNER[30]) in einer Diplomarbeit die relativen Intensitäten der *L*- und *M*-Konversionslinien von γ 32,2 bestimmt und mit den theoretischen Werten von ROSE[23]) verglichen (Tabelle 6).

Es zeigt sich, dass die Werte für einen $E3$ am besten mit dem experimentellen Ergebnis übereinstimmen.

Man hat bisher die aus dem Konversionsspektrum bekannte γ-Linie von 290,5 $\pm$ 0,5 keV als $M4$ und Crossover von γ 32,2 $\pm$ 0,1 keV und

γ 257,4 $\pm$ 0,5 keV angegeben. Aus dem nunmehr gemessenen K/L-Verhältnis lässt sich aber sagen, dass der $M4$ von einer stärkeren Linie der gleichen Energie verdeckt wird.

Tabelle 6

	L_{II}/L_{III} theoret.	$M_{I\,II\,III}/M_{IV\,V}$	L/M
E 1	0,76	3,54	2,51
E 2	0,88	51,2	2,3
E 3	0,87	4,81	1,41
E 4	1,30	0,57	0,44
	experimentell		
	0,75	11,34	1,33

7. *Zerfallsschema Hg^{193}–Au^{193}*

Auf Grund der Koinzidenzmessungen haben wir für den Zerfall Hg–Au^{193} ein Zerfallsschema erstellt, das in Figur 12 dargestellt ist. Darin sind nur die aus Koinzidenzmessungen bestimmten Niveaus enthalten.

Für die tiefsten Niveaus haben GILLON *et al.*[12]) bereits ein Zerfallsschema vorgeschlagen, das, nur auf Messungen von Konversionsspektren basierend, wohl einen hohen Grad von Wahrscheinlichkeit besass (insbesondere beim Vergleich mit den durch die Arbeit von JOLY *et al.*[7]) einwandfrei abgeklärten Zerfällen von Hg–Au^{197} und Hg–Au^{195}), aber noch keineswegs gesichert war. Wir haben deshalb zuerst das vorgeschlagene Schema verifiziert. Als wichtige Stütze des Schemas erwies sich dabei die von uns neu gefundene γ-Linie von 219,7 keV, die sich als Verbindung zwischen den Niveaus von 258 keV ($5/2^+$) und 38 keV ($^1/_2{}^+$) ins Schema einordnen lässt. Da diese Linie als $E2$ eine relativ starke γ-Intensität aufweist, konnte die Koinzidenz 38 L, M-γ 186 keV nicht sicher nachgewiesen werden, dürfte aber vorhanden sein.

Die Koinzidenzmessungen in 38L, M und 186K zeigen in den Koinzidenzspektren γ-Linien, von denen man im Konversionsspektrum nur K-Linien gefunden hat und die sich nun in das Zerfallsschema einreihen lassen. Aus den Koinzidenzen 38L, M-γ 761,8 und 186K – γ 570 erhält man ein Niveau von 800 keV, während die Koinzidenzen 38L, M – γ 1040 und 186K – γ 855 zu einem Niveau von 1078 keV führen. Diese beiden Niveaus müssen offenbar vom Grundzustand von Hg^{193} angeregt werden. Die mit 186K in Koinzidenz gefundene γ-Linie von 570 keV hat nach den bekannten Energien der übrigen beteiligten Linien eine Energie von 574,3 $\pm$ 1,2 keV. Aus Intensitätsgründen ist sie mit der starken γ-Linie

von 573,6 ± 0,7 keV nicht identisch, von der sie jedoch nicht getrennt werden kann.

Die Angaben in Tabelle 5 ergeben unter Berücksichtigung der Intensitäten der verschiedenen Linien die folgenden Kaskaden mit allfälligen Crossovers:

345 – 394 – 382 – 218 keV
933 – 408 keV
535 – 537 – 573 keV
914 – 573 keV

Aus den Intensitäten schliesst man weiter, dass die entsprechenden Niveaus aus dem Isomer $Hg^{193\,m}$ gespeist werden. Analoge Überlegungen wie beim Zerfall von Hg-Au^{195} (Existenz von Crossovers) zeigen, dass

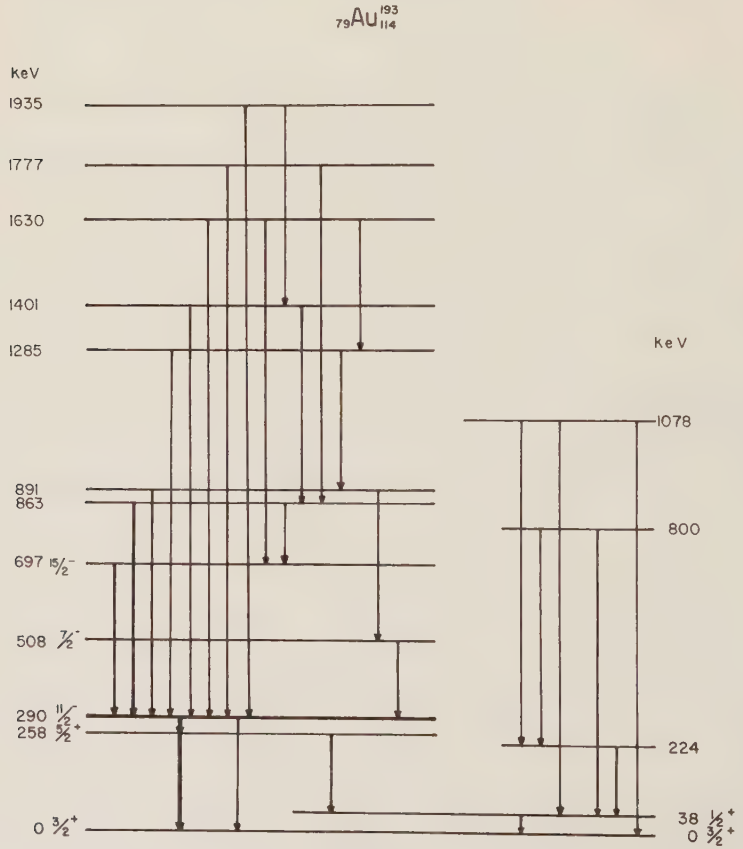


Fig. 12.

Niveauschema von Au^{193}: die links bezeichneten Niveaus werden vom Isomer Hg^{193m}, die rechts bezeichneten Niveaus vom Grundzustand Hg^{193} angeregt.

diese Kaskaden auf das isomere Niveau von Au^{193} führen. Damit erhält man folgende neue Energieniveaus: 508, 697, 863, 891, 1285, 1401, 1630, 1777 und 1935 keV.

In dieses Schema passt noch eine γ-Linie von 165,9 keV, von der man nur die K-Konversionslinie kennt. Von GILLON *et al.*[12]) wurde im Zerfall von Au^{192} eine unzugeordnete Konversionslinie von 85,0 keV aufgeführt mit einer Halbwertszeit von 8 h, während die übrigen diesem Zerfall zugeordneten Linien eine Halbwertszeit von 6 h besitzen. Eine Zuordnung zum Zerfall Au^{192} scheint uns aus Intensitätsgründen ausgeschlossen, finden wir doch in unsern Messungen die stärksten Linien von Au^{192} nur in schwachen Andeutungen. Wir interpretieren sie als K-Linie eines γ-Überganges von 165,9 keV zwischen den Niveaus 863 keV und 697 keV.

Aus den γ–γ- wie aus den β–γ-Koinzidenzmessungen weiss man, dass γ 408 keV mit einer γ-Linie höherer Energie in Koinzidenz ist. Es dürfte sich dabei um eine Überlagerung verschiedener γ-Linien handeln. Eine wahrscheinliche Kombination ist

$$408 + 1328 - 1736 \text{ keV}$$

denn auch

$$500 + 1235 = 573 + 1160 = 996 + 739 = 1111 + 624 = 1735 \text{ keV}$$

Es bleiben noch eine ganze Reihe unzugeordneter Linien, die notwendigerweise zu einer Anzahl neuer Energieniveaus führen müssen. Zu deren endgültiger Einreihung in das Zerfallsschema müssen verbesserte experimentelle Methoden angewendet werden.

Wir geben nachstehend einige Energiekombinationen, die mit ziemlicher Wahrscheinlichkeit auf weitere Energieniveaus über dem Isomer Au^{193} schliessen lassen:

$$\begin{aligned} 218 + 282 &= 500 \\ 500 + 361 &= 861 \\ 500 + 371 &= 871 \\ 500 + 675 &= 1175 \\ 500 + 1145 &= 1645 \\ 861 + 381 &= 871 + 371 = 878 + 364 = 1242. \end{aligned}$$

C. Andere Zerfälle

1. Au–Pt^{195} und Au–Pt^{193}

In unseren Quellen fanden sich notwendigerweise auch die Aktivitäten von Au^{195} und Au^{193}, die in das stabile Pt^{195} bzw. in das langlebige Pt^{193} führen. Dabei haben sich im wesentlichen die Resultate von A. DE SHALIT et al.[31]) bzw. EWAN[32]) bestätigt. Wir haben jedoch die nach EWAN in Pt^{193}

konvertierte schwer nachweisbare γ-Linie von 12,6 keV (erstes angeregtes Niveau) nicht gefunden. Es wäre interessant zu untersuchen, ob der isomere Übergang ($M4$) im Pt^{193} zum Grundzustand oder in dieses Niveau von 12,6 keV führt. Dies scheinen die beiden einzigen Möglichkeiten zu sein. In beiden Fällen wäre aber die Spinzuordnung von Ewan für die Niveaus von Pt^{193} nicht richtig, denn der einwandfrei festgestellte $M4$ von 135,4 keV dürfte vom $13/2^+$- zum $5/2^-$-Niveau führen.

2. Au^{196}

In einer Au-Quelle haben wir die zum Zerfall von Au^{196} gehörenden γ-Linien mit der bekannten Halbwertszeit von 6 d gefunden[9]). Diese Aktivität muss durch die Reaktion Au^{197} (p, d) Au^{196} oder Au^{197} (p, pn) Au^{196} entstanden sein.

3. Hg^{194}

Unsere Quellenherstellung hat stets eine reine Hg-Aktivität geliefert. Die Tatsache, dass wir in unseren Quellen die zum Zerfall von Au^{194} gehörenden Linien gefunden haben, lässt sich nur dadurch erklären, dass diese Aktivität aus Hg^{194} entstanden ist. Das Hg^{194} hat nach unsern Messungen eine Halbwertszeit von $\sim$ 600 d. Wir haben keine in Au^{194} konvertierten γ-Linien gefunden; die festgestellten Aktivitäten waren aber so schwach, dass uns solche Linien sehr wohl entgangen sein können.

4. Hg^{192}

In unseren Quellen haben wir die stärksten von Gillon *et al.*[12]) dem Zerfall von Hg^{192} zugeordneten Konversionslinien gefunden (γ 31 keV, γ 157 keV und γ 275 keV). Ferner ist die oberste Komponente des Positronenspektrums (Tabelle 3), deren Grenzenergie zu $E_0 = 2{,}22 \pm 0{,}05$ MeV gemessen wurde, nach Halbwertszeit und Koinzidenzmessungen dem Zerfall Au^{192}–Pt^{192} zuzuordnen.

IV. Diskussion der Resultate

1. Energiedifferenzen der Isobare und ft-Werte

Joly et al.[7]) haben für die Isobare Hg–Au der Massenzahlen 197, 195 und 193 aus der Weizsäckerformel und den bekannten Energiedifferenzen benachbarter Isotope folgende Energiedifferenzen der Grundzustände angegeben: Hg–Au^{197}: Q = 560 keV, Hg–Au^{195}: Q = 1600 keV, Hg–Au^{193}: Q = 2600 keV.

Aus der von uns gemessenen Grenzenergie des Positronenzerfalls $Hg^{193\,m}$–Au^{193m} von 1170 $\pm$ 30 keV erhält man für Hg–Au^{193}: Q = 2340 $\pm$ 30 keV.

HOURIET[33]) hat aus dem bekannten Zerfall Au–Hg^{199} folgende Q-Werte berechnet:

$$\begin{aligned} Hg-Au^{197} &: Q = 810 \pm 100 \text{ keV} \\ Hg-Au^{195} &: Q = 1760 \pm 100 \text{ keV} \\ Hg-Au^{193} &: Q = 2460 \pm 200 \text{ keV} \end{aligned}$$

Der letzte Wert ist in guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Resultat.

Wir haben mit den Werten von HOURIET die ft-Werte der Elektroneneinfänge in die Niveaus von Au^{197} und Au^{195} neu berechnet. In Tabelle 10 sind die Resultate für die verschiedenen Niveaus der Au-Isotope zusammengestellt. Der ft-Wert für den Zerfall $Hg^{193m}-Au^{193m}$ ist unter der Annahme eines Konversionskoeffizienten $\alpha_K = 0{,}25$ für γ 258 keV berechnet.

2. Spin und Parität der Au-Niveaus

Die Niveauschemata von Au^{197}, Au^{195} und Au^{193} sind nach früheren Arbeiten in den tieferen Energien auffallend ähnlich[7])[8])[12]). Wir können nun versuchen, die Analogie bis zu höheren Niveaus zu verfolgen. Beim Vergleich der Zerfallsschemata von Au^{195} (Fig. 7) und Au^{193} (Fig. 12) erkennt man, dass sich bis zu einer Energie von 1400 keV fast alle gefundenen Energieniveaus einander zuordnen lassen. Dass in Au^{193} nicht alle aus dem Niveauschema von Au^{195} bekannten vom Grundzustand des Hg angeregten Niveaus gefunden werden, lässt sich aus der Tatsache leicht verstehen, dass 92% der Zerfälle aus dem Hg-Isomer durch Elektroneneinfang und Positronenzerfall in Niveaus von Au^{193} mit hohem Spin und nur 8% über den $M4$ und weiter in den Grundzustand des Hg führen. In Hg^{195} ist das entsprechende Verzweigungsverhältnis 1:1.

Wegen der Analogie der Zerfallsschemata genügt es, die Spinzuordnung im besser bekannten Isotop Au^{195} zu diskutieren. Zur Diskussion von Spin und Parität wurden weitgehend die Anschauungen des Schalenmodells herangezogen. Es soll später begründet werden, dass dieses Vorgehen berechtigt ist.

Nach den Vorstellungen des Schalenmodells werden in der Protonenschale zwischen $Z = 50$ und $Z = 82$ die Zustände

$$g\ 7/2,\ d\ 5/2,\ h\ 11/2,\ d\ 3/2,\ s\ 1/2$$

aufgefüllt. Als tiefliegendes Niveau mit hohem Spin, das Anlass zu Isomerie geben kann, ist ein Zustand $h\ 11/2$ zu erwarten[34]). Das Niveau 318 keV kann deshalb sicher als 11/2 bezeichnet werden. Aus den bekannten Multipolaritäten von γ 57 keV und γ 262 keV ergibt sich für das Niveau von 262 keV ein $5/2^+$-Zustand und für den Grundzustand $3/2^+$. In Au^{197} ist der Grundzustand tatsächlich zu 3/2 gemessen worden[35]). Da

γ 200,5 keV (Übergang vom Niveau 262 keV zum Niveau 61 keV) als $E2$ identifiziert wurde, kann man das Niveau 61 keV sicher als $1/2^+$ erkennen. Der Elektroneneinfang ins Niveau von 241 keV besitzt einen höheren ft-Wert als alle andern vom Hg-Grundzustand ausgehenden Zerfälle. Da γ 180 keV aber $M1$ (+ $E2$)-Charakter besitzt, muss das Niveau 241 keV entweder $3/2^+$ oder $1/2^+$ sein.

Das Niveau 525 keV stellt eine Verbindung zwischen Niveaus von hohem und niederem Spin her. Die γ-Linie von 207 keV besitzt wie die in Au^{193} analoge Linie von 218 keV eindeutig $E2$-Charakter. Daraus schliesst man für das Niveau von 525 keV auf einen $7/2^-$-Zustand. Ferner erhält man für das vom Hg-Grundzustand gespeiste Niveau von 1110 keV als mögliche Zuordnungen $5/2^+$ oder $7/2^+$, ist es doch durch einen $E1$ mit dem Niveau 525 keV verbunden.

Das Niveau 706 keV, das über einen $E2$ ins Isomer $Au^{195\,m}$ zerfällt, wird, wie man noch deutlicher beim analogen Niveau von 697 keV in Au^{193} sieht, wesentlich anders angeregt als das Niveau $7/2^-$. Dies deutet darauf hin, dass das Niveau 706 keV ein $15/2^-$-Zustand ist.

Spin und Parität der übrigen Niveaus lassen sich nicht eindeutig angeben, wenn auch die Zahl der Möglichkeiten teilweise auf 2 eingeschränkt werden kann. Die Betrachtungen im folgenden Abschnitt geben weitere Hinweise für wahrscheinliche Spinzuordnungen.

Der Elektroneneinfang ins Niveau von 525 keV mit $7/2^-$ vom $Hg^{195\,m}$ ist dreifach und vom Hg-Grundzustand doppelt verboten. Man findet auch tatsächlich keinen direkten Elektroneneinfang in dieses Niveau. Auch der Grundzustand und die Niveaus von 262 keV und 893 keV erhalten direkt keine messbare Intensität. Alle übrigen Elektroneneinfänge sind nach den ft-Werten einfach verboten.

3. Vergleich der experimentellen Resultate mit den Voraussagen der Theorie

a) Schalenmodell

Angeregt durch die Arbeiten von PRYCE[13])[36]) haben wir versucht, seine Methode für die Berechnung der Energieniveaus von Pb^{205} auf Au^{195} anzuwenden.

Die Voraussetzungen des Schalenmodells (kugelsymmetrisches Potential, Spin-Bahn-Kopplung) seien erfüllt. Die Darstellung eines Kernzustandes durch eine einzige Konfiguration soll eine gute Näherung liefern. Man betrachtet einen Kern, in dem sich die Neutronen in abgeschlossenen Schalen befinden, während sich p Protonen (oder Löcher) in einer angebrochenen Schale bewegen. In nullter Näherung ist dann die Energie des Zustandes durch die Summe der Energien der zu den ausserhalb der abgeschlossenen Schalen befindlichen Protonen gehörenden Einteil-

chenzustände gegeben. Die p Protonen kombinieren im allgemeinen zu verschiedenen Zuständen mit verschiedenen Spins, die in nullter Näherung degenerieren. In erster Näherung berücksichtigt man die Wechselwirkungsenergie der p Protonen untereinander, wodurch die degenerierten Niveaus aufspalten. Damit wird die Totalenergie des Zustandes

$$E_{\mathrm{Tot}} = E_0 + E_p + E_{pp}$$

(Energie des Rumpfes plus Einteilchenenergie plus Wechselwirkungsenergie).

In den Rechnungen wird angenommen, dass die Reichweite der Kernkräfte kurz ist gegenüber dem Kerndurchmesser. In diesem Falle können als wesentliche Parameter für die Wechselwirkung zwischen zwei Partikeln die Singulett- und die Triplett-Wechselwirkung gelten. Diese Wechselwirkung wird ferner als klein gegenüber der Spin-Bahn-Aufspaltung betrachtet, das heisst man nimmt j–j-Koppelung an. Die Wechselwirkungsenergie soll proportional der Wahrscheinlichkeit sein, dass sich zwei Teilchen in unmittelbarer Nachbarschaft befinden. Die Rechnung, über die man bei PRYCE[36]) Einzelheiten findet, führt für die Wechselwirkungsenergie von zwei gleichen Partikeln zu einem Ausdruck folgender Form:

$$E_{pp} = a_s E_s \tag{2}$$

Die Gewichtskoeffizienten a_s sind direkt berechenbar; die Konfigurationsparameter E_s können aus den Überlappungen der Wellenfunktionen abgeschätzt werden.

Sofern in der Konfiguration nur ein Niveau mit Spin I vorkommt, gewinnt man die Wechselwirkungsenergie zwischen 3 gleichen Teilchen (oder Löcher) aus einer Linearkombination von Integralen, in denen nur 2 Teilchen vorkommen

$$E_{\mathrm{int}} = < | V_{23} + V_{31} + V_{12} | > \tag{3}$$

Diese Teilintegrale werden aus (2) erhalten unter Berücksichtigung des Pauliprinzips und aller möglichen Kombinationen, eventuell multipliziert mit einem Gewichtsfaktor. So ist zum Beispiel

$$E_{\mathrm{int}}\,[(s\ 1/2)^2\ d\ 5/2] = E_{\mathrm{int}}\,[(s\ 1/2)^2] + 5/6\ E_{\mathrm{int}}\,[(s\ 1/2,\ d\ 5/2)_{\mathrm{I}=2}] + 7/6 E_{\mathrm{int}}\,[(s\ 1/2,\ d\ 5/2)_{\mathrm{I}=3}]$$

Au^{195} weist 3 Löcher in der Protonenschale und 10 Löcher in der Neutronenschale auf. Benützt man zur Berechnung der Energieniveaus von Au^{195} die aus der Arbeit von ANDERSSON et al.[6]) bekannten Energien der Niveaus von Tl^{197} als Einteilchenenergien, so sind darin die Neutron-Proton-Wechselwirkungen bereits enthalten. Man kann also im Falle von

*

Au^{195} wie bei Pb^{205} vorgehen, das eine abgeschlossene Protonenschale und eine Neutronenschale mit 3 Löchern besitzt.

In Tabelle 7 sind die der Arbeit von ANDERSSON entnommenen Lochenergien der Protonenzustände in MeV aus Tl^{197} zusammengestellt.

Tabelle 7

	Tl^{195}	Tl^{197}	Tl^{199}
h 11/2	0,940	0,994	
d 5/2	0,841	0,772	0,720
d 3/2	0,393	0,387	0,367
s 1/2	0	0	0

Die Konfigurationsparameter ε_s für die verschiedenen Konfigurationen sind unter der Bezeichnung a, b, ... in Tabelle 8 enthalten und analog PRYCE angenommen oder interpoliert. Sieht man von einer Korrektur

Tabelle 8

		MeV
$(s\ 1/2)^2$	a	0,38
$s\ 1/2\ d\ 5/2$	b	0,28
$s\ 1/2\ d\ 3/2$	c	0,28
$(d\ 5/2)^2$	d	0,33
$d\ 3/2\ d\ 5/2$	e	0,33
$(d\ 3/2)^2$	g	0,33
$s\ 1/2\ h\ 11/2$	i	0,18
$(h\ 11/2)^2$	k	0,25
$d\ 3/2\ h\ 11/2$	l	0,20

für Konfigurations-Wechselwirkungen ab, so erhält man für die Gesamtenergie der verschiedenen möglichen Dreilöcher-Konfigurationen die in Tabelle 9 angegebenen Werte. Der Nullpunkt der Energieskala wurde dem Niveau mit der tiefsten Energie zugeordnet. Kombinationen mit g 7/2 sind nicht berücksichtigt. Das entsprechende Niveau wurde in Tl nicht gefunden; es dürfte ziemlich hoch liegen und Kombinationen mit g 7/2 demnach ebenfalls hohe Energie besitzen. Die Energie der Konfiguration $[(h\ 11/2)^2\ d\ 3/2]_{3/2^+}$ wurde berechnet unter der Annahme, dass $(h\ 11/2)^2{}_{I\ \ 0}$ den wesentlichen Beitrag zur Energie liefert (siehe PRYCE[13]) Bemerkung am Schluss, p. 238). Es sind nur einzelne Konfigurationen berechnet, die vom Isomer $Hg^{195\,m}$ erreicht werden können.

Aus Tabelle 9 ergibt sich als Konfiguration des Grundzustandes $[(s\ 1/2)^2\ d\ 3/2]_{3/2^+}$. Für das Niveau von 61 keV mit Spin $1/2^+$ kann man sicher $[(s\ 1/2)\ \ (d\ 3/2)^2]_{1/2^+}$ angeben. Dem Niveau 262 keV lässt sich

Tabelle 9

I	Konfiguration	W	Energie	MeV
$1/2^+$	$s\ 1/2\ (d\ 5/2)^2$	3	$1{,}54-b-3\ d$	0,54
	$s\ 1/2\ \ d\ 3/2\ d\ 5/2$	2	$1{,}16-6/5\ b-4/5\ c$	0,77
	$s\ 1/2\ (d\ 3/2)^2$	1	$0{,}77-c-2\ g$	0,1
	$d\ 3/2\ (d\ 5/2)^2$	2	$1{,}93-24/35\ d-16/35\ e$	1,8
	$d\ 5/2\ (d\ 3/2)^2$	1	$1{,}55-3/5\ e-2/5\ g$	1,49
	$s\ 1/2\ (h\ 11/2)^2$	3	$1{,}99-i\ \ \ -6\ k$	0,58
$3/2^+$	$(s\ 1/2)^2\ d\ 3/2$	2	$0{,}39-\mathrm{a}\ \ \ -c$	0
	$s\ 1/2\ (d\ 5/2)^2$	3	$1{,}54-8/5\ b-24/35\ d$	1,13
	$s\ 1/2\ \ d\ 3/2\ d\ 5/2$	2	$1{,}16-3/5\ b-2/5\ c-6/35\ e$ $\pm\ 1/5\ (9\ b^2+4\ c^2+36/49\ e^2+$ $+\ 9\ bc+27/7\ b\ \ e+3/7\ c\ e)^{1/2}$	0,8 / 1,38
	$(d\ 5/2)^3$	3	$2{,}32-12/7\ d$	2,03
	$s\ 1/2\ (d\ 3/2)^2$	1	$0{,}77-2/5\ c-2/5\ g$	0,8
	$d\ 3/2\ (d\ 5/2)^2$	2	$1{,}93-129/70\ d-23/35\ e$ $\pm\ 1/70\ ((81\ d+24\ e)^2+1120\ e^2)^{1/2}$	0,85 / 1,89
	$d\ 5/2\ (d\ 3/2)^2$	1	$1{,}55-6/35\ d-2/5\ g$	1,67
	$(d\ 3/2)^3$	1	$1{,}16-2\ g$	0,77
	$d\ 3/2\ (h\ 11/2)^2$	2	$2{,}38-6\ k-l$	0,95
$5/2^+$	$(s\ 1/2)^2\ d\ 5/2$	3	$0{,}77-a-b$	0,38
	$(d\ 5/2)^3$	3	$2{,}32-3\ d$	1,6
	$s\ 1/2\ (d\ 5/2)^2$	3	$1{,}54-3/5\ b-24/35\ d$	1,41
	$s\ 1/2\ \ d\ 3/2\ d\ 5/2$	2	$1{,}16-3/5\ b-2/5\ c-6/35\ e$ $\pm\ 1/5\ (9\ b^2+4\ c^2+36/39\ e^2+$ $+\ 4\ b\ c-4\ b\ e-8/7\ c\ e)^{1/2}$	0,91 / 1,27
	$(d\ 5/2)^2\ d\ 3/2$	2	$1{,}93-17/35\ d-4/5\ e$ $\pm\ 1/35\ (49\ d^2+232\ de+304\ e^2)^{1/2}$	1,55 / 2,01
	$(d\ 3/2)^2\ d\ 5/2$	1	$1{,}55-23/35\ e-6/5\ g$ $\pm\ 2/5\ ((6/7\ e+2\ g)^2+10/7\ e^2)^{1/2}$	1,03 / 1,85
	$s\ 1/2\ (d\ 3/2)^2$	1	$0{,}77-7/5\ c-2/5\ g$	0,52
$7/2^+$	$s\ 1/2\ (d\ 5/2)^2$	3	$1{,}54-2\ b-2/7\ d$	1,18
	$s\ 1/2\ d\ 3/2\ d\ 5/2$	2	$1{,}16-3/5\ b-2/5\ c-4/7\ e$ $\pm\ 1/5\ (9\ b^2+4\ c^2+400/49\ e^2-$ $-\ 3\ b\ c+15\ b\ e-55/7\ c\ e)^{1/2}$	0,69 / 1,23
	$(d\ 5/2)^2\ d\ 3/2$	2	$1{,}93-17/35\ d-4/5\ e$ $\pm\ 1/35\ (49\ d^2+232\ de+619\ e^2)^{1/2}$	1,01 / 1,57
	$d\ 5/2\ (d\ 3/2)^2$	1	$1{,}55-46/35\ e-2/5\ g$	1,25
$9/2^+$	$s\ 1/2\ \ d\ 3/2\ d\ 5/2$	2	$1{,}16-4/5\ c-8/7\ e$	0,83
	$s\ 1/2\ (d\ 5/2)^2$	3	$1{,}54-1/5\ b-2/7\ d$	1,66
	$(d\ 5/2)^3$	3	$2{,}32-39/35\ d$	2,22
	$(d\ 5/2)^2\ d\ 3/2$	2	$1{,}93-2/7\ d-32/35\ e$	1,29
	$(d\ 3/2)^2\ d\ 5/2$	1	$1{,}55-11/7\ e-2/5\ g$	1,17
$11/2^+$	$(d\ 5/2)^2\ d\ 3/2$	2	$1{,}93-2/7\ d$—$13/7\ e$	1,49
$11/2^-$	$(s\ 1/2)^2\ h\ 11/2$	3	$0{,}99-a-i$	0,7

$[(s\ 1/2)^2\ d\ 5/2]_{5/2^+}$ zuordnen. Für die höheren angeregten Zustände bestehen der ziemlich rohen Abschätzung wegen ($\sim$ 0,4 MeV) mehrere Möglichkeiten.

ZELDES[37]) gibt an, dass die g-g-Kerne von Hg im Grundzustand die Protonen-Lochkonfiguration $(d\ 3/2)^2$ besitzen. Nach unserer Annahme, dass die Beeinflussung Neutronen-Protonen gering ist, sollte diese Konfiguration auch für die ungeraden Hg-Isotope gelten. Die Bevorzugung einzelner Energieniveaus durch den Elektroneneinfang ins Au mit grundsätzlich gleichem Verbotenheitsgrad, wie er sich aus den ft-Werten ergibt, lässt sich dadurch erklären, dass ein Übergang vorzugsweise in solche Niveaus stattfindet, in denen das neu entstehende Protonenloch direkt mit den schon bestehenden $(d\ 3/2)^2$ kombinieren kann. Übergänge mit komplizierteren Umgruppierungen sollen demnach verlangsamt sein. In Tabelle 9 bedeutet W die Anzahl der Löcher, die sich bei einem Elektroneneinfang in die entsprechende Konfiguration umgruppieren müssen. Man erhält damit bereits eine Begründung dafür, dass man keine direkten Übergänge in den Grundzustand mit $W = 2$ und das Niveau von 262 keV mit $W = 3$ beobachtet. Für die Niveaus von 841 keV, 1082 keV, 1110 keV und 1172 keV muss man also insbesondere Konfigurationen mit $W = 1$ in Betracht ziehen. Da von den höheren Niveaus nur das Niveau 1172 keV einen direkten γ-Übergang in den Grundzustand besitzt, kann dieses Kriterium auch für die γ-Übergänge in Au herangezogen werden. Als wahrscheinliche Zuordnungen ergeben sich demnach für 841 KeV die Konfiguration $[(d\ 3/2)^3]_{3/2^-}$, für 1110 keV $[(d\ 3/2)^2\ d\ 5/2]_{5/2^+}$ und für 1172 keV $[s\ 1/2\ (d\ 3/2)^2]_{3/2^+}$.

Die Konfiguration des isomeren Niveaus in Au lässt sich nicht eindeutig angeben, wenn auch $[(s\ 1/2)^2\ h\ 11/2]_{11/2^-}$ die wahrscheinlichste ist. Die berechnete Energie für diese Konfiguration ist aber so gross (0,7 MeV), dass sie eher für das Niveau von 878 keV passen würde. Auch ein $11/2^-$-Zustand der Konfiguration $(h\ 11/2)^3$ könnte in Analogie zu den Untersuchungen von FLOWERS[38]) über $(g\ 9/2)^3$ tief liegen und somit zum Niveau von 318 keV gehören. Aber auch $[(d\ 3/2)^2\ h\ 11/2]_{11/2^-}$ könnte mit den angegebenen zwei Konfigurationen in Konkurrenz treten. Das Niveau 525 keV mit Spin $7/2^-$ dürfte zur Konfiguration $(h\ 11/2)^3$ gehören, ist doch nach FLOWERS in der Konfiguration $(g\ 9/2)^3$ ein Niveau mit Spin $5/2^+$ bei gewisser Reichweite der Kernkräfte das tiefste Niveau. Auch die Konfigurationen $(d\ 3/2)^2\ h\ 11/2$, $(d\ 5/2)^2\ h\ 11/2$, $d\ 3/2\ d\ 5/2\ h\ 11/2$, $s\ 1/2\ d\ 3/2\ h\ 11/2$ und $s\ 1/2\ d\ 5/2\ h\ 11/2$ liefern Zustände mit Spin $7/2$, deren Energie wir aber des grossen Aufwandes wegen nicht berechnet haben.

Wir haben Energieniveaus, die aus Anregung der Neutronen entstehen können, nicht berücksichtigt. Solche Niveaus sind nach den Untersuchungen von ZELDES[37]) erst bei höheren Energien zu erwarten ($\sim$ 1,2 MeV).

Zudem müssten solche Übergänge aus dem Hg von Umgruppierungen mehrerer Teilchen begleitet sein, was eine wesentliche Verlangsamung gegenüber den tatsächlich gefundenen Übergängen bedeuten würde.

In einer grösseren Arbeit hat ZELDES[37]) eine Systematik über die Auffüllung der Schalen längs dem periodischen System aufgestellt. Er betrachtet prinzipiell nur Einteilchenzustände; das heisst in unserem Fall von 3 Löchern entstehen solche Zustände nur durch Kombination von zwei Löchern, die sich zu einem Spin 0 ergänzen, mit einem dritten Loch, das den Spin der Konfiguration bestimmt. Er gibt Formeln an zur Berechnung der Energie eines Zustandes und tabelliert die Wechselwirkungsenergien zweier Nukleonen (Slater-Parameter) für den Fall von Delta-Kräften und dem Potential des harmonischen Oszillators. Er bezeichnet in seinen Untersuchungen $[d\,3/2\,(h\,11/2)^2]_{3/2^-}$ als Konfiguration des Grundzustandes von Au^{195}. Dies steht im Widerspruch zu unserem Resultat.

Aus dem Tl^{197} kennt man die Energiedifferenz Δ_{Tl} zwischen den Protonenlochkonfigurationen $h\,11/2$ und $s\,1/2$. Diese Grösse lässt sich auch nach Formel 16 aus ZELDES[37]) berechnen. Man erhält

$$\begin{aligned}\Delta_{Tl} &= E\,(j_1^{2n_1}\, j_2^{2p_2}\, j_4^{2p_4-1}) - E\,(j_1^{2n_1}\, j_2^{2p_2-1}\, j_4^{2p_4}) \\ &= A_2 - A_4 + \Pi_2 - \Pi_4 + 5\,F_{24}^0 + 10\,(F_{12}^0 - F_{14}^0)\end{aligned}$$

$n_1 = 5$ ($i\,13/2$-Neutronen), $p_2 = 1$ ($s\,1/2$-Protonen)
$p_4 = 6$ ($h\,11/2$-Protonen)

Analog ergibt sich für Au^{195} eine Energiedifferenz zwischen den beiden Konfigurationen $[(h\,11/2)^2\,d\,3/2]_{3/2^+}$ und $[(s\,1/2)^2\,d\,3/2]_{3/2_+}$

$$\begin{aligned}\Delta_{Au} - E\,(j_1^{2n_1}\, j_2^{2p_2}\, j_3^{2p_3+1}\, j_4^{2(p_4-1)}) - E\,(j_1^{2n_1}\, j_2^{2(p_2-1)}\, j_3^{2p_3+1}\, j_4^{2p_4}) \\ = 2\,(A_2 - A_4) + \Pi_2 - \Pi_4 + 20\,(A_{12}^0 - A_{14}^0) + 10\,F_{24}^0 \\ + 3\,(F_{23}^0 - F_{34}^0) \\ \Delta_{Au} = 2\,\Delta_{Tl} - (\pi_2 - \pi_4) + 3\,(F_{23}^0 - F_{34}^0)\end{aligned}$$

$p_3 = 1$ ($d\,3/2$-Protonen).

Der Neutroneneinfluss fällt also bei der verwendeten Näherung heraus. Δ_{Tl} entnimmt man der Tabelle 7. Die übrigen Grössen findet man bei ZELDES. Damit wird

$$\Delta_{Au} = +\,1{,}1\ \text{MeV}.$$

Das Niveau mit der Konfiguration $[(h\,11/2)^2\,d\,3/2]_{3/2^-}$ liegt also auch nach dieser Berechnung deutlich höher als der von uns angegebene Grundzustand von $[(s\,1/2)^2\,d\,3/2]_{3/2^+}$. Es ist immerhin zu bemerken,

dass die bei ZELDES tabellierten Π_i und F^0_{ik} für das Oszillatorpotential gelten. Es ist jedoch unwahrscheinlich, dass die Berücksichtigung des tatsächlichen Potentials die Reihenfolge der beiden Niveaus zu vertauschen vermag.

Nach der Methode von PRYCE erhält man gemäss Tabelle 9 für die gleiche Energiedifferenz

$$\Delta_{Au} = + 0{,}95\,\text{MeV}.$$

b) Kollektivmodell

An Au^{197} wurden in den letzten Jahren eine ganze Reihe von Untersuchungen mit Hilfe der Coulomb-Anregung durchgeführt[3]). Ausser den bereits aus dem Zerfall von Hg^{197} bekannten Niveaus von 77 keV, 268 keV und 279 keV wurde ein weiteres Niveau von 550 keV angeregt, dem der Spin $7/2^{(+)}$ zugeordnet wurde. Die gemessenen Anregungsfunktionen stimmen mit den theoretisch berechneten für elektrische Multipolanregung gut überein. Die Intervallregeln für Rotationsspektren lassen sich aber für keine Niveaukombination erfüllen. Diese letzte Bemerkung gilt auch für die Energieniveaus von Au^{195} und Au^{193}.

Als Kriterium dafür, ob ein Kern rund oder deformiert ist, kann eine semiempirische Formel herangezogen werden: Ist die Rotationsenergiekonstante $3\,\hbar^2/\Im$ des (als Rotationsniveau gedeuteten) ersten angeregten Niveaus grösser (oder kleiner) als $13\,\hbar^2/\Im_{rig}$, dann ist der Kern rund (oder deformiert). Darin bedeutet $\Im_{rig}$ das Trägheitsmoment des als starre Kugel der Masse AM gedeuteten Kerns. Für Au^{195} ergibt sich, dass die Rotationsenergiekonstante für den Übergang $3/2^+ - 5/2^+$ (Grundzustand zu Niveau 262 keV) wie auch für den Übergang $1/2^+ - 3/2^+$ (Übergang von Niveau 61 keV zu Niveau 241 keV) etwa doppelt bis dreifach so gross wird wie die kritische Vergleichsenergie $(E_2)_{krit}$. Dies spricht dafür, dass Au^{195}, wie auch die Kerne Au^{197} und Au^{193}, für deren entsprechende Übergänge dieses Kriterium ebenfalls erfüllt ist, zu den runden Kernen zu rechnen sind und somit keine Rotationsniveaus auftreten. Inwiefern Vibrationszustände möglich sind, ist aus dem jetzigen Stand der Theorie schwer abzuschätzen. Die Diskussion der experimentellen Resultate auf Grund des Schalenmodells erscheint demnach als gerechtfertigt. Die grosse Übergangswahrscheinlichkeit einiger Übergänge in Au^{197} deutet immerhin an, dass gewisse Effekte kollektiver Anregung vorhanden sind.

4. *Zusammenfassung*

Die beschriebenen Arbeiten sind als Versuch unternommen worden, aus den Voraussagen der Kernmodelle Aufschlüsse über die Struktur der Spektren der ungeraden Au-Isotope Au^{197}, Au^{195} und Au^{193} zu erhalten.

Die Anregung der Energieniveaus erfolgt aus den Zerfällen der entsprechenden Hg-Isotope durch Elektroneneinfang oder Positronenemission.

Eine grosse Zahl kernspektroskopischer Messungen, unter denen als wesentliche Beiträge Koinzidenzmessungen an einem β-Spektrometer zu nennen sind, haben zur Erstellung von Zerfallsschemata für Au^{195} und Au^{193} geführt. Die Diskussion der experimentellen Resultate zeigt, dass Au^{195} und Au^{193} noch als kugelsymmetrische Kerne betrachtet werden können. Die grossen Übergangswahrscheinlichkeiten für einige Übergänge, die in den Versuchen mit Coulomb-Anregung von Au^{197} gemessen worden sind, führen jedoch zur Vermutung, dass Kollektivbewegungen gewisse Einflüsse auf die Eigenschaften einiger Niveaus ausüben.

Mit Hilfe der Anschauungen des Schalenmodells gelingt es fast ausnahmslos, den Niveaus Spin und Parität zuzuordnen. Es wird ferner versucht, mit einer von PRYCE[13]) für Pb^{205} entwickelten Methode, die sich auf das Schalenmodell stützt, die Energien der zu erwartenden Niveaus zu berechnen. Dabei wird angenommen, dass sich die Energie einer Konfiguration zusammensetzt aus der Energie der einzelnen Löcher im kugelsymmetrischen Potential plus der Wechselwirkungsenergie der drei Protonenlöcher. Es gelingt, einer ganzen Reihe von Niveaus eindeutig eine Konfiguration zuzuordnen. Nach dem Schalenmodell ist zu erwarten, dass die Niveauschemata von Au^{197}, Au^{195} und Au^{193} weitgehende Analogien aufweisen. Es zeigt sich tatsächlich, dass bis zu hohen Energien ($\sim$ 1500 keV) in den verschiedenen Isotopen sich entsprechende Niveaus zuordnen lassen, obschon die Zahl der bekannten Niveaus sehr gross geworden ist. Dies geht deutlich aus der in Tabelle 10 enthaltenen Zusammenstellung der Resultate für Au^{197}, Au^{195} und Au^{193} hervor (die Ergebnisse für Au^{197} sind der Arbeit von JOLY[7]) entnommen, abgesehen von den neu berechneten *ft*-Werten). Besonders fällt das Auftreten des isomeren Überganges von $11/2^-$ zu $5/2^+$ (E 3) in allen drei Isotopen auf. Der Grundzustand ist stets $3/2^+$. Die kleine Verschiebung eines Niveaus von Isotop zu Isotop ist dem Einfluss der Neutronen zuzuschreiben. Die Annahme, dass man es in der benützten Näherung bis zu $\sim$ 1,5 MeV mit reinen Protonenzuständen zu tun hat, bestätigt sich.

Es zeigt sich, dass die Interpretation der kernspektroskopischen Ergebnisse auf Grund der Kernmodelle zu wesentlichen Aussagen führt.

Die Messungen, die wir am Nobelinstitut in Stockholm durchführen konnten, wurden uns durch die grosszügige Gastfreundschaft der Herren Prof. M. SIEGBAHN und Prof. H. SLÄTIS ermöglicht. Für die Ausführung einer ganzen Reihe von Bestrahlungen im Cyclotron des Gustaf-Werner-Institutes in Uppsala sind wir den Herren Prof. T. SVEDBERG und

Tabelle 10

Energieniveau			Verzweigungsverhältnis %			log *ft*			Spin	Konfiguration
Au^{197}	Au^{195}	Au^{193}	Au^{197}	Au^{195}	Au^{193}	Au^{197}	Au^{195}	Au^{193}		
		1935								
		1777								
		1630								
	1558			1,5			7,3		$13/2^-$	
	1404	1401		1			7,8			
	1345			1			8,0			
	1279	1285		1			8,1		$11/2^-$, $9/2^-$	
	893	891		—					$9/2^-$, $7/2^-$	
	878	863		12			7,4		$11/2^-$, $13/2^-$	
	706	697		2,5			8,3		$15/2^-$	
	525	508		—					$7/2^-$	$(h\ 11/2)^3$
409	318	290	3,4	29	18	7,4	7,5	7,4	$11/2^-$	$(s\ 1/2)^2\ h\ 11/2$, $(h\ 11/2)^3$
279	262	258	—	—					$5/2^+$	$(s\ 1/2)^2\ d\ 5/2$
0	0	0	—	—					$3/2^+$	$(s\ 1/2)^2\ d\ 3/2$
	1172	1078		4			6,9		$3/2^+$	$(s\ 1/2)\ (d\ 3/2)^2$
	1110			4			6,9		$5/2^+$	$(d\ 3/2)^2\ d\ 5/2$
	1082			2			7,2		$3/2^+$	
	841	800		17			6,6		$3/2^+$	$(d\ 3/2)^3$
268	241	224	1,2	2		8	8		$3/2^+$, $1/2^+$	
77	61	38	98,8	71		6,4	6,5		$1/2^+$	$(s\ 1/2)\ (d\ 3/2)^2$
0	0	0	—	—					$3/2^+$	$(s\ 1/2)^2\ (d\ 3/2)$

Dr. A. Svanheden, sowie für die Erlaubnis, das doppelfokussierende Spektrometer desselben Institutes benützen zu dürfen, den Herren Dr. E. Arbman und Dr. G. Andersson sehr zu Dank verpflichtet. Die freundliche Unterstützung durch die Herren Prof. K. Siegbahn und Dr. T. R. Gerholm von der Universität Uppsala war uns eine grosse Hilfe. Herrn Prof. O. Huber verdanken wir wertvolle Anregungen. Den Herren Dr. D. Maeder und Dr. H. Guhl danken wir für den Bau und die Überlassung einer Anzahl elektronischer Geräte. Dank schulden wir für wertvolle Diskussionen und Mithilfe bei den Messungen auch den Herren K. Alder, H. J. Leisi, C. Perdrisat und J. H. Brunner.

Literaturverzeichnis

[1]) M. G. Mayer, Phys. Rev. *78*, 16, *22* (1950).
[2]) O. Haxel, J. H. D. Jensen, H. E. Suess, Phys. Rev. *75*, 1766 (1949).
[3]) K. Alder, A. Bohr, T. Huus, B. Mottelson, A. Winther, Rev. Mod. Phys. *28*, 432 (1956).
[4]) J. B. Swan, R. D. Hill, Phys. Rev. *88*, 831 (1952).
[5]) K. Alder, A. Winther, Phys. Rev. *91*, 1578 (1953).
[6]) G. Andersson, E. Arbman, B. Jung, Arkiv f. Fysik *11*, 297 (1957).
[7]) R. Joly, J. Brunner, J. Halter, O. Huber, Helv. Phys. Acta *28*, 403 (1955)
[8]) J. Brunner, H. Guhl, J. Halter, O. Huber, Helv. Phys. Acta *28*, 85 (1955).
[9]) J. Brunner, H. Guhl, J. Halter, H. J. Leisi, Helv. Phys. Acta *28*, 475 (1955).
[10]) J. Brunner, J. Halter, H. J. Leisi, Helv. Phys. Acta *29*, 237 (1956).
[11]) J. Brunner, J. Halter, Ch. Perdrisat, Helv. Phys. Acta *30*, 269 (1957).
[12]) L. P. Gillon, K. Gopalakrishnan, A. de-Shalit, J. W. Mihelich, Phys. Rev. *93*, 124 (1954).
[13]) M. H. L. Pryce, Nuclear Physics *2*, 226 (1956/57).
[14]) D. Maeder, Helv. Phys. Acta *20*, 139 (1947).
[15]) A. Hedgran, K. Siegbahn, N. Svartholm, Proc. Phys. Soc. *63*, 960 (1950).
[16]) A. Hedgran, Arkiv f. Fysik *5*, 1 (1952).
[17]) E. Arbman, N. Svartholm, Arkiv f. Fysik *10*, 1 (1956).
[18]) T. R. Gerholm, Arkiv f. Fysik *11*, 55 (1956).
[19]) H. J. Leisi, Diplomarbeit ETH. (1954).
[20]) W. Zünti, Helv. Phys. Acta *21*, 179 (1948).
[21]) H. Guhl (erscheint demnächst in Helv. Phys. Acta).
[22]) J. Brunner, J. Halter, O. Huber, R. Joly, D. Maeder, Helv. Phys. Acta *27*, 572 (1954).
[23]) M. E. Rose (privat verteilte Tabellen).
[24]) L. Sliv (privat verteilte Tabellen).
[25]) O. Huber, F. Humbel, H. Schneider, A. de-Shalit, Helv. Phys. Acta *25*, 3 (1952).
[26]) J. H. Moon, A. L. Thompson, Phys. Rev. *83*, 892 (1951).

[27]) D. Maeder, Rev. Sci. Instr. *26*, 805 (1955).
[28]) D. Maeder, P. Staehelin, Helv. Phys. Acta *28*, 193 (1955).
[29]) V. K. Fischer, Phys. Rev. *99*, 764 (1955).
[30]) J. H. Brunner, Diplomarbeit ETH. (1957).
[31]) A. de-Shalit, O. Huber, H. Schneider, Helv. Phys. Acta *25*, 279 (1952).
[32]) G. T. Ewan, Can. J. Phys. *35*, 672 (1957).
[33]) A. Houriet (private Mitteilung).
[34]) M. Goldhaber, A. W. Sunyar, Phys. Rev. *83*, 906 (1951).
[35]) J. E. Mack, Rev. Mod. Phys. *22*, 64 (1950).
[36]) M. H. L. Pryce, Proc. Phys. Soc. A *65*, 773 (1952).
[37]) N. Zeldes, Nuclear Physics *2*, 1 (1956/57).
[38]) B. H. Flowers, Proc. Roy. Soc. *215*, 398 (1952).

Electromagnetic Properties of the Nucleon and Relativistic Electron-Proton Scattering According to Meson Theory

by **Lalit Kumar Pandit**

Seminar für theoretische Physik der Universität Zürich

(14. II. 1958)

Summary. The relativistic cut-off prescription of ARNOUS and HEITLER is used here to calculate the anomalous magnetic moments of the nucleons and the elastic scattering of high energy electrons by protons on the basis of charge-symmetrical pseudoscalar meson theory, using both pseudoscalar and pseudovector couplings. The calculations are carried to the first order in perturbation theory. Good agreement is found with the experimental results of HOFSTÄDTER *et al.* on the electron proton scattering. Further the non-relativistic limit of the anomalous moments has been studied and a discrepancy in the results of the usual non-relativistic meson theory models has been pointed out and treated.

Introduction

It has been felt for a long time now that the present day field theories stand in need of a fundamental change in their structure. For instance, meson theory, inspite of the large amount of work done on it, has had little more than qualitative success. Recently, however, a hope has arisen that the theory can still be used in its present form with moderate success within a certain region of its validity. The limit of validity of the theory is usually expressed in the form of a 'cut-off'. Such a cut-off prescription was proposed some time ago by ARNOUS and HEITLER[1]). This prescription has the advantage that the cut-off is applied in a relativistically invariant way to the three-dimensional momenta of the virtual particles. In the non-relativistic limit this cut-off is equivalent to an extended source. It is, naturally, interesting to study the effect of this cut-off on the various meson-theoretical phenomena. With this in

view, we deal in the present work with some of the electromagnetic properties of the nucleons according to meson theory. Our chief purpose has been to calculate the scattering of high energy electrons by protons, interest in which has grown since its measurement at Stanford by HOFSTADTER, MCALLISTER and CHAMBERS[2]). The measurements have been performed with electron energies ranging up to 550 Mev. These experimenters were able to find nice fits for their data on the basis of phenomenological models describing the proton as having an extended charge and magnetic moment distribution. Since meson theory also leads to some sort of an extended structure for the nucleons, it is worth while studying this scattering on the basis of meson theory. The high energies involved require the theory to be relativistic, which is the case in the present work. Alongside this, the old problem of the anomalous magnetic moments of the nucleons has also been studied. The calculations have been carried to the lowest order in covariant perturbation theory using both pseudoscalar and pseudovector couplings of the mesons to the nucleons.

Without any cut-off, the electron proton scattering was studied meson-theoretically first by ROSENBLUTH[3]), but his results have never been compared with experiments. The anomalous magnetic moments were calculated similarly by many authors[4]). A non-relativistic calculation of the charge and magnetic moment distribution and electron proton scattering on the basis of the static model–recently used by CHEW[5])–has also been performed by SALZMAN[6]).

In the first section of this paper, we describe briefly the general formalism used. In the second section, we deal with the nucleon in the presence of an external electromagnetic field with a view to obtaining the anomalous magnetic moments. This external electromagnetic field is then replaced in the third section by the electron and its field leading to the electron-proton scattering. In the fourth section we study the non-relativistic limit of our theory for the anomalous moments, as it brings out a very interesting feature of the cut-off procedure used here. It is found that this non-relativistic limit is different from the result obtained from the static model since the latter is unable to take account of the deformation of the source for a moving nucleon–an effect which has, even in the limit of the nucleon at rest, a nonvanishing result. This is because (as shown in section IV) the ambiguous terms to be removed can be identified only when the nucleon moves.

Our calculations show that meson theory, with the cut-off used, leads to very good agreement with the electron-proton scattering experiments at all energies.

Section I

1. *Notations*

The neutron and proton are described by the Dirac spinors ψ_N, ψ_P. As usual, these are considered as the two charge states of a single particle, the nucleon, described by the eight-component spinor ψ. The 'charge-operators' acting on these charge states are defined as:

$$\tau_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \tau_2 = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \tau_3 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}; \quad \tau = \frac{1}{2}(\tau_1 + i\tau_2); \quad \tau^\dagger = \frac{1}{2}(\tau_1 - i\tau_2);$$

with the properties,

$$\tau\psi_N = \psi_P; \quad \tau\psi_P = 0; \quad \tau^\dagger\psi_P = \psi_N; \quad \tau^\dagger\psi_N = 0.$$

We also define:

$$\tau_P = \frac{1}{2}(1 + \tau_3); \quad \tau_N = \frac{1}{2}(1 - \tau_3);$$

so that

$$\tau_P\psi_P = \psi_P; \quad \tau_N\psi_N = \psi_N; \quad \tau_P\psi_N = \tau_N\psi_P = 0.$$

M denotes the mass of the nucleon.

Throughout we shall use the units for which $c = \hbar = 1$.

The four-dimensional time-space coordinates are:

$$x^0 = t; \quad x^1 = x; \quad x^2 = y; \quad x^3 = z,$$

and such a four-vector is written in the text

$$\boldsymbol{x} = (x^0, \vec{x})$$

and in the diagrams with an underlined letter, $\underline{x} = (x^0, \vec{x})$.

The metric $g_{\mu\nu}$ has the components

$$g_{00} = 1; \quad g_{ii} = -1 \ (i = 1, 2, 3); \quad g_{\mu\nu} = 0 \ (\mu \neq \nu).$$

β, α^k are the usual Dirac-operators and we also write

$$\gamma^0 = \beta; \quad \gamma^k = \beta\alpha^k \ (k = 1, 2, 3);$$

$$\gamma_5 \equiv \gamma^0\gamma^1\gamma^2\gamma^3; \quad \bar{\psi} \equiv \psi^\dagger\gamma_0;$$

we have then

$$\gamma^\mu\gamma^\nu + \gamma^\nu\gamma^\mu = 2g^{\mu\nu}I.$$

The product of two four-vectors is written, for example, as follows:

$$(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{A}) = \sum_{\mu=0}^{3}\gamma^\mu A_\mu = \sum_{\mu=0}^{3}\gamma_\mu A^\mu = \gamma^0 A^0 - \vec{\gamma}\cdot\vec{A}.$$

The π-mesons are described by a pseudoscalar field. The neutral mesons are described by a real field φ_3 and the charged mesons by a complex field φ with the real and imaginary parts essentially φ_1 and φ_2:

$$\varphi = \frac{1}{\sqrt{2}}(\varphi_1 + i\,\varphi_2)\,; \quad \varphi^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2}}(\varphi_1 - i\,\varphi_2).$$

The mass of the meson is denoted by μ.

An external electromagnetic field will be described by the four-potential A^μ.

The electron spinors and operators will be distinguished by an index 'e'.

2. *Interaction Hamiltonian*

Let us put

$$B = (\bar{\psi}\,\gamma_5\,\tau\,\psi)\,; \qquad B^\dagger = (\bar{\psi}\,\gamma_5\,\tau^\dagger\,\psi)\,; \qquad B^{(3)} = (\bar{\psi}\,\gamma_5\,\tau_3\,\psi)\,;$$
$$B_\mu - i\,(\psi\,\gamma_5\gamma_\mu\,\tau\,\psi)\,; \quad B^\dagger_\mu = i\,(\bar{\psi}\,\gamma_5\gamma_\mu\,\tau^\dagger\,\psi)\,; \quad B^{(3)}_\mu = i\,(\psi\,\gamma_5\gamma_\mu\,\tau_3\,\psi).$$

We have then, in the 'Interaction-representation', the state vector $\Phi(t)$, of the system of the nucleons and mesons in an electromagnetic field, described by the equation

$$i\,\frac{\partial\,\Phi(t)}{\partial\,t} = H_I\,\Phi(t)\,,$$

where

$$H_I = \int \mathfrak{H}_I(\boldsymbol{x})\,d^3x\,;$$

$$\begin{aligned}
\mathfrak{H}_I(\boldsymbol{x}) = {} & G B^{(3)}(\boldsymbol{x})\,\varphi_3(\boldsymbol{x}) + \sqrt{2}\,G B(\boldsymbol{x})\,\varphi(\boldsymbol{x}) + \sqrt{2}\,G B^\dagger(\boldsymbol{x})\,\varphi^\dagger(\boldsymbol{x}) + \\
& + \frac{F}{\mu}\,B^{(3)}_\mu(\boldsymbol{x})\,\frac{\partial\,\varphi_3(\boldsymbol{x})}{\partial\,x_\mu} + \sqrt{2}\,\frac{F}{\mu}\,B^\dagger_\mu(\boldsymbol{x})\,\frac{\partial\,\varphi^\dagger(\boldsymbol{x})}{\partial\,x_\mu} + \\
& + \sqrt{2}\,\frac{F}{\mu}\,B_\mu(\boldsymbol{x})\,\frac{\partial\,\varphi(\boldsymbol{x})}{\partial\,x_\mu} + \\
& + \frac{F^2}{\mu^2}\left\{\frac{1}{2}\left[N_\mu B^{(3)\mu}(\boldsymbol{x})\right]^2 + 2\left[N_\mu B^{\mu\,\dagger}(\boldsymbol{x})\right]\left[N_\nu B^\nu(\boldsymbol{x})\right]\right\} - \\
& - i\,e\left\{\frac{\partial\,\varphi^\dagger(\boldsymbol{x})}{\partial\,x_\mu}\,\varphi(\boldsymbol{x}) - \varphi^\dagger(x)\,\frac{\partial\,\varphi(\boldsymbol{x})}{\partial\,x_\mu}\right\} A_\mu(\boldsymbol{x}) + \\
& + e\,\bar{\psi}(\boldsymbol{x})\,\gamma^\mu\tau_P\,\psi(\boldsymbol{x})\,A_\mu(\boldsymbol{x}) - \\
& - e^2\left\{A_\mu(\boldsymbol{x})\,A^\mu(\boldsymbol{x}) - \left[N_\mu A^\mu(\boldsymbol{x})\right]^2\right\}\varphi^\dagger(\boldsymbol{x})\,\varphi(\boldsymbol{x}) + \\
& + i\sqrt{2}\,e\,\frac{F}{\mu}\left\{B_\mu(\boldsymbol{x})\,A^\mu(\boldsymbol{x})\,\varphi(\boldsymbol{x}) - B^\dagger_\mu(\boldsymbol{x})\,A^\mu(\boldsymbol{x})\,\varphi^\dagger(\boldsymbol{x}) - \right. \\
& \qquad - \left[N_\mu B^\mu(\boldsymbol{x})\right]\left[N_\nu A^\nu(\boldsymbol{x})\right]\varphi(\boldsymbol{x}) + \\
& \qquad \left. + \left[N_\mu B^{\mu\,\dagger}(\boldsymbol{x})\right]\left[N_\nu A^\nu(\boldsymbol{x})\right]\varphi^\dagger(\boldsymbol{x})\right\}. \qquad \text{(I -- 1)}
\end{aligned}$$

N_μ is the unit normal to the space-like surface at $\boldsymbol{x}$. Here we may drop the 'normal-dependent' terms and use Mathews' rules for the calculation of the S-matrix*). G is the pseudoscalar coupling constant and F the pseudovector coupling constant. We may put either of them equal to zero, depending on the coupling we wish to use. The theory used is throughout charge-symmetrical. e is the charge of the proton.

The commutation rules are, as usual:

$$[\varphi_3(\boldsymbol{x}), \varphi_3(\boldsymbol{x}')] = [\varphi(\boldsymbol{x}), \varphi^\dagger(\boldsymbol{x}')] = i\,\Delta(\boldsymbol{x}-\boldsymbol{x}'),$$

where

$$\Delta(\boldsymbol{x}) = \frac{-i}{(2\pi)^3}\int_{-\infty}^{+\infty} d^4k\; e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{x}}\,\delta(\boldsymbol{k}^2-\mu^2)\,\varepsilon(\boldsymbol{k}),$$

$$\varepsilon(\boldsymbol{k}) = \frac{k_0}{|k_0|}$$

and

$$[\psi_\alpha(\boldsymbol{x}), \bar{\psi}_\beta(\boldsymbol{x}')]_+ = -i\,S_{\alpha\beta}(\boldsymbol{x}-\boldsymbol{x}')$$

where

$$S(\boldsymbol{x}-\boldsymbol{x}') = -\left(i\gamma_\mu\frac{\partial}{\partial x_\mu}+M\right)\Delta(\boldsymbol{x}-\boldsymbol{x}';M),$$

$\Delta(\boldsymbol{x};M)$ being the same Δ-function as above excepting that μ is replaced by M.

In case we use a quantised electromagnetic field we shall also have the commutation relation

$$[A_\mu(\boldsymbol{x}), A_\nu(\boldsymbol{x}')] = -i\,g_{\mu\nu}D(\boldsymbol{x}-\boldsymbol{x}')$$

where $D(\boldsymbol{x}-\boldsymbol{x}')$ is equal to $\Delta(\boldsymbol{x}-\boldsymbol{x}')$ with $\mu = 0$.

3. *S-matrix*

It is defined by

$$\Phi(\infty) = S\,\Phi(-\infty).$$

$$S = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} S_n;$$

$$S_n = \frac{(-i)^n}{n!}\int d^4x_1\int d^4x_2\int\cdots\int d^4x_n$$
$$P\left(\mathfrak{H}_I(\boldsymbol{x}_1)\;\mathfrak{H}_I(\boldsymbol{x}_2)\cdots\;\mathfrak{H}_I(\boldsymbol{x}_n)\right).$$

P denotes the chronological operator of Dyson.

---

*) See P. T. Mathews: Phys. Rev. *76*, 684 *L* (1949); Phys. Rev. *76*, 1419 *L* (1949)

We have appended the above notations and definitions for the sake of clarity and completeness. We shall assume hence-forth the methods of writing the matrix elements for the various processes, as they are all very widely known and discussed.

4. *The cut-off procedure*

We shall apply the cut-off to the three-dimensional momenta of the virtual mesons absorbed and emitted by a nucleon. This cut-off is invariant in the sense that it is equivalent to applying it to the invariant variable of integration z given by

$$z^2 = \left\{ \sqrt{M^2 + (\vec{p} - \vec{k})^2} + \sqrt{\mu^2 + \vec{k}^2} \right\}^2 - \vec{p}^2 , \qquad (\mathrm{I} - 2)$$

where $\vec{p}$ is the momentum of the nucleon and $\vec{k}$ that of the meson. Integrals, which by their physical nature are invariant, can be expressed as integrals over z only instead of the variable k. When the nucleon is at rest, this cut-off in z is equivalent to cutting off $\vec{k}$ symmetrically to a radius K_0. If $\vec{p}$ is not equal to zero then the above sphere of integration for $\vec{k}$ is transformed by a Lorentz-deformation, which is expressed by the invariance of z.

Of course, it should be noted that the cut-off is not here meant for (nor is it capable of) suppressing any ambiguities due to divergences of the field theory. These must always be first removed by the usual physical considerations of covariance, renormalization, etc. and then the resulting integrals are to be cut-off, whether finite or infinite.

Section II

The nucleon in an external electromagnetic field

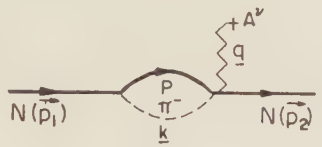
To obtain the anomalous magnetic moments of the neutron and proton we consider their scattering by a slowly varying external electromagnetic field described by the four-potential:

with
$$\left.\begin{aligned} A^\nu(\boldsymbol{x}) &= \int a^\nu(\boldsymbol{q})\, e^{-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{x}}\, d^4 q \\ \frac{\partial A_\nu}{\partial x_\nu} &= 0\,; \quad i \cdot e,\ \boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q}) = 0. \end{aligned}\right\} \qquad -(\mathrm{II} - 1)$$

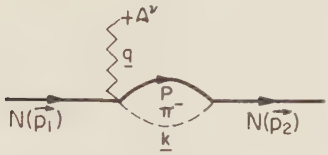
For simplicity, we consider briefly the case of the neutron as it will bring out all the essential features necessary for our further discussions. (For more details about this see Fried (ref. [4].) We limit ourselves to

the lowest order S-matrix elements, proportional to $e F^2$. The pseudovector coupling is used and we shall indicate below how the pseudoscalar coupling is studied alongside.

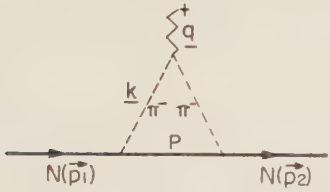
Below are shown the various Feynman-diagrams which contribute to our process:



(1) $M_2^{(1)}$



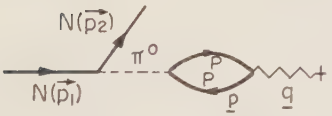
(2) $M_2^{(2)}$



(3) $M_3^{(1)}$



(4) $M_3^{(2)}$



(5) $M_3^{(3)}$

Here $\vec{p}_1$ is the initial neutron momentum and $\vec{p}_2$ the final. Let u_1 and u_2 represent the corresponding Dirac spinors. Writing

$$E(\vec{p}) = \sqrt{\vec{p}^2 + M^2}\,,$$

$$\boldsymbol{q} = \boldsymbol{p}_2 - \boldsymbol{p}_1\,,$$

and

$$\Lambda = e\left(\frac{F}{\mu}\right)^2 \frac{1}{(2\pi)^3} \sqrt{\frac{M^2}{E(\vec{p}_1)\,E(\vec{p}_2)}}\,,$$

*

the matrix elements corresponding to the above five diagrams are respectively:

$$M_2^{(1)} = -2\Lambda \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2 (\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q}))\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_1+\boldsymbol{k})+M\}(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1}{[(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}, \qquad (\mathrm{II}-2)$$

$$M_2^{(2)} = -2\Lambda \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2 (\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_2+\boldsymbol{k})+M\}(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q}))\, u_1}{[(\boldsymbol{p}_2-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}, \qquad (\mathrm{II}-3)$$

$$M_3^{(1)} = 2\Lambda \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{k})\}\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_1+\boldsymbol{k})+M\}(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1}{[(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2][(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2-\mu^2]} \cdot \boldsymbol{a}(\boldsymbol{q})\cdot(2\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}), \qquad (\mathrm{II}-4)$$

$$M_3^{(2)} = 2\Lambda \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2 (\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_2+\boldsymbol{k})+M\}(\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q})\cdot\boldsymbol{\gamma})\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_1+\boldsymbol{k})+M\}(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1}{[(\boldsymbol{p}_2-\boldsymbol{k})^2-M^2][(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}, \qquad (\mathrm{II}-5)$$

$$M_3^{(3)} = -\Lambda \int d^4p \, (\bar{u}_2 \gamma_5 (\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})\, u_1) \, \frac{\mathrm{Spur}\,[\gamma_5(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{p})(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q}))\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(\boldsymbol{p}+\boldsymbol{q})\}]}{[\boldsymbol{p}^2-M^2][(\boldsymbol{p}+\boldsymbol{q})^2-M^2][\boldsymbol{q}^2-\mu^2]}. \qquad (\mathrm{II}-6)$$

The spur occurring in $M_3^{(3)}$ is equal to zero. Thus we have

$$M_3^{(3)} \equiv 0.$$

In the above integrals, the k_0 variable is to be integrated first with the prescription that M and μ in the denominators carry a small negative imaginary part which goes to zero after the integration.

Using the properties of Dirac equation and some simplifications, we may combine these matrix elements thus:

$$M_{\mathrm{I}} \equiv M_3^{(1)} = 2\,\Lambda\,(2\,M)^2 \int d^4k \, \frac{(\bar{u}_2 \boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k}\, u_1)\{\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q})\cdot(2\boldsymbol{k}+q)\}}{[(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2][(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2-\mu^2]} + \\ + 2\,\Lambda \int d^4k \, \frac{(\bar{u}_2(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k}+2\,M)\, u_1)(2\,\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q})}{[\boldsymbol{k}^2-\mu^2][(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2-\mu^2]}, \qquad (\mathrm{II}-7)$$

$$M_{\mathrm{II}} \equiv M_3^{(2)} + M_2^{(1)} + M_2^{(2)} = \\ = 2\,\Lambda\,(2\,M)^2 \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2 (\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q}))(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1}{[(\boldsymbol{p}_2-\boldsymbol{k})^2-M^2][(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2]} - \\ - 2\,\Lambda \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2 \boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q})\, u_1}{[\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}. \qquad (\mathrm{II}-8)$$

In these we shall put

$$\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q}) = 0.$$

The first terms in M_{I} and M_{II} are exactly what one gets for the pseudoscalar coupling if one puts $(2\,MF/\mu) = G$. The second terms are the extra effect due to the pseudovector coupling. M_{I} is then the so-called meson-current contribution and M_{II} the nucleon-current contribution to the scattering, as is clear from the diagrams (3) and (4).

Further evaluations and simplifications are done as usual. An example is given below.

Thus in the first term of M_{II} we are interested in an integral of the form

$$\mathfrak{J} = \int d^4 k \frac{k_\mu k_\nu}{[\boldsymbol{k}^2 - 2\,\boldsymbol{p}_1 \cdot \boldsymbol{k} + \Delta_1]\,[\boldsymbol{k}^2 - 2\,\boldsymbol{p}_2 \cdot \boldsymbol{k} + \Delta_1]\,[\boldsymbol{k}^2 + \Delta_2]},$$

where we use

$$\boldsymbol{p}_1^2 - M^2 = 0 = \boldsymbol{p}_2^2 - M^2,$$

and so have

$$\Delta_1 = 0, \Delta_2 = -\mu^2.$$

To combine the denominators we use the Feynman formulae:

$$\frac{1}{a\,b} = \int_0^1 d\,x \frac{1}{[a\,x + b\,(1-x)]^2}$$

$$\frac{1}{a\,b\,c} = \int_0^1 d\,x \int_0^1 2\,y \cdot d\,y \frac{1}{[a\,x\,y + b\,y\,(1-x) + c\,(1-y)]^3}.$$

Putting:

$$a = \boldsymbol{k}^2 - 2\,\boldsymbol{p}_1 \cdot \boldsymbol{k} + \Delta_1, \quad b = \boldsymbol{k}^2 - 2\,\boldsymbol{p}_2 \cdot \boldsymbol{k} + \Delta_1, \quad c = \boldsymbol{k}^2 + \Delta_2$$

and

$$\boldsymbol{p}_x = \boldsymbol{p}_1\,x + \boldsymbol{p}_2\,(1-x),$$

we have

$$\mathfrak{J} = \int d^4 k \int_0^1 d\,x \int_0^1 2\,y\,d\,y \frac{k_\mu k_\nu}{[\boldsymbol{k}^2 - 2\,\boldsymbol{p}_x \cdot \boldsymbol{k}\,y + \Delta_1\,y + \Delta_2\,(1-y)]^3}.$$

To make the denominator an even function of the integration variable $\boldsymbol{k}$ we put

$$\boldsymbol{k} - \boldsymbol{p}_x\,y = \boldsymbol{k}'.$$

Note that to obtain the magnetic moments we go in the end to the case where the nucleon is at rest, i.e. $\vec{p}_1 = \vec{p}_2 = 0$. Thus the above transformation will not change the cut-off limits. But in the case of an actual nucleon scattering (as is the case in section III) we may have $\vec{p}_1 = 0$ but $\vec{p}_2$ is not equal to zero. Then the cut-off limits are to be transformed suitably, or, as is done by us, we go back to the original $\vec{k}$ from $\vec{k}'$ before applying the cut-off. Our integral is now:

$$\mathfrak{J} = \int d^4 k' \int_0^1 d\,x \int_0^1 2\,y\,d\,y \frac{k_\mu' k_\nu' + (p_x\,y)_\mu\,(p_x\,y)_\nu + k_\mu'\,(p_x\,y)_\nu + k_\nu'\,(p_x\,y)_\mu}{(\boldsymbol{k}'^2 + \Delta)^3},$$

where

$$\Delta = -\boldsymbol{p}_x^2\,y^2 + \Delta_1\,y + \Delta_2\,(1-y).$$

A great simplification is now achieved by using (according to FEYNMAN) the equations:

$$\int d^4k' \cdot (\text{an odd number of factors } k'_\mu)\, f(\boldsymbol{k}'^2) = 0\,, \qquad (\text{II}-9)$$

$$\int d^4k'\, k'_\mu k'_\nu f(\boldsymbol{k}'^2) = \int d^4k'\, \frac{1}{4}(\boldsymbol{k}'^2 g_{\mu\nu})\, f(\boldsymbol{k}'^2)\,.$$

This last equation could also be written, for two four-vectors A_μ, B_μ, thus:

$$\int d^4k'\, (\boldsymbol{k}'\cdot\boldsymbol{A})\,(\boldsymbol{k}'\cdot\boldsymbol{B})\, f(\boldsymbol{k}'^2) = (\boldsymbol{A}\cdot\boldsymbol{B}) \int d^4k' \left(\frac{1}{4}\boldsymbol{k}'^2\right) f(\boldsymbol{k}'^2)\,. \qquad (\text{II}-10)$$

The justification of this equation (which is important for us exactly for our divergent and ambiguous integrals) is obvious when the limits of integration are infinite. That it is justified also for our invariant cut-off follows in this manner. Since the above integral is to be relativistically invariant and since after the integrations we at most introduce only an invariant cut-off *constant*, the only form it can have is

$$\text{Inv. constant} \times (\boldsymbol{A}\cdot\boldsymbol{B}).$$

And this form clearly requires that

$$\int d^4k'\, k_0'^2 f(\boldsymbol{k}'^2) = -\int d^4k'\, k_1'^2 f(\boldsymbol{k}'^2) = -\int d^4k'\, k_2'^2 f(\boldsymbol{k}'^2) =$$
$$= -\int d^4k'\, k_3'^2 f(\boldsymbol{k}'^2) = \frac{1}{4}\int d^4k'\, \boldsymbol{k}'^2 f(\boldsymbol{k}'^2)\,.$$

It is true that when the integral is diverging, the above form does not necessarily follow from every explicit calculation (as is usually the case of the well-known ambiguous integrals of field theory); but then invariance and therefore the above from has to be demanded as an additional postulate. Thus our integral reduces to

$$\mathfrak{J} = \int d^4k' \int_0^1 dx \int_0^1 2\,y\,dy\, \frac{\frac{1}{4}\boldsymbol{k}'^2 g_{\mu\nu} + (p_x y)_\mu (p_x y)_\nu}{(\boldsymbol{k}'^2 + \Delta)^3}\,.$$

Using the Dirac equation and the properties of γ-matrices we obtain the matrix elements in the following form (we write $M_{\text{I}}^{(1)}$, $M_{\text{I}}^{(2)}$ for the first and second terms of M_{I} respectively):

$$M_{\text{I}}^{(1)} = 2A\,(2M)^2\,\bar{u}_2\left\{\tfrac{1}{2}MB_2[(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}),(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})] + 2M^2B_2\,(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}) + K_2(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a})\right\} u_1,$$
$$M_{\text{II}}^{(1)} = 2A\,(2M)^2\,\bar{u}_2\{M\,(A+B_1)\,[(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}),(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})] + A\boldsymbol{q}^2\,(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}) +$$
$$+ (2M^2A + 2M^2B_1 - K_1)\,(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a})\}\, u_1,$$
$$M_{\text{I}}^{(2)} = 2A\,(2M)^2\,\bar{u}_2\left\{\frac{K_3}{8M^2}\,(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a})\right\} u_1,$$
$$M_{\text{II}}^{(2)} = -2A\,(2M)^2\,\bar{u}_2\left\{-\frac{1}{4M^2}\,K_4\,(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a})\right\} u_1. \qquad (\text{II}-11)$$

We have put above simply $\boldsymbol{a}$ for $\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q})$, and made the following substitutions:

$$\left.\begin{aligned}
A &= 2\int d^4k' \int_0^1 dx \int_0^1 dy \, \frac{y^3 x(1-x)}{(\boldsymbol{k}'^2+\Delta)^3}, \\
B_1 &= 2\int d^4k' \int_0^1 dx \int_0^1 dy \, \frac{y^3 x^2}{(\boldsymbol{k}'^2+\Delta)^3}, \\
K_1 &= \int_0^1 dx \int_0^1 dy \cdot y \int d^4k' \, \frac{\boldsymbol{k}'^2}{(\boldsymbol{k}'^2+\Delta)^3}, \\
B_2 &= 2\int d^4k'' \int_0^1 dx \int_0^1 dy \, \frac{y^3 x^2}{(\boldsymbol{k}''^2+D)^3}, \\
K_2 &= \int_0^1 dx \int_0^1 dy \cdot y \int d^4k'' \, \frac{\boldsymbol{k}''^2}{(\boldsymbol{k}''^2+D)^3}, \\
K_3 &= \int_0^1 dx \int d^4k''' \, \frac{\boldsymbol{k}'''^2}{(\boldsymbol{k}'''^2+\delta)^2}, \\
K_4 &= \int d^4k \, \frac{1}{\boldsymbol{k}^2-\mu^2};
\end{aligned}\right\} \qquad \text{(II — 12)}$$

$$\left.\begin{aligned}
\Delta &= -\mu^2(1-y) - M^2y^2 + y^2x(1-x)\,\boldsymbol{q}^2, \\
D &= -M^2x^2y^2 - \mu^2(1-xy) + y(1-y)(1-x)\,\boldsymbol{q}^2, \\
\delta &= -\mu^2 + \boldsymbol{q}^2 x(1-x);
\end{aligned}\right\} \qquad \text{(II — 13)}$$

$$\left.\begin{aligned}
\boldsymbol{k}' &= \boldsymbol{k} - \{\boldsymbol{p}_1 x + \boldsymbol{p}_2(1-x)\}y, \\
\boldsymbol{k}'' &= \boldsymbol{k} - \{\boldsymbol{p}_1 x - \boldsymbol{q}(1-x)\}y, \\
\boldsymbol{k}''' &= \boldsymbol{k} + \boldsymbol{q}x.
\end{aligned}\right\} \qquad \text{(II — 14)}$$

The total matrix element is thus given by

$$M_s = M_I + M_{II} = 2\Delta(2M)^2 \cdot \cdot \bar{u}_2\{P[(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}),(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})] + Q(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}) + R\,\boldsymbol{q}^2(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a})\}u_1, \qquad \text{(II — 15)}$$

where we have

$$\left.\begin{aligned}
P &= M(A + B_1 + \tfrac{1}{2}B_2), \\
Q &= 2M^2A + 2M^2B_1 + 2M^2B_2 - K_1 + K_2 + \frac{1}{8M^2}K_3 - \frac{1}{4M^2}K_4 \\
R &= A
\end{aligned}\right\} \qquad \text{(II — 16)}$$

P, Q, R are all integrals involving $\boldsymbol{q}^2$ as a parameter. To determine the magnetic moment we are interested in fields which vary slowly so that we may take $\boldsymbol{q}^2$ as very small and expand in powers of $\boldsymbol{q}^2$ and retain terms at most linear in $\boldsymbol{q}$.

Thus writing, e.g.,

$$A\ (0) = [A\ (\boldsymbol{q}^2)]_{\boldsymbol{q}^2\ =\ 0}$$

we have

$$M_s = 2\Lambda(2\ M)^2\ \ \bar{u}_2\{Q(0)\ (\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}) + P(0)\ [(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{a}),\ (\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})] + \cdots\}\ u_1 .$$

Using

$$a^\nu(\boldsymbol{q}) = \frac{1}{(2\pi)^4}\int A^\nu(\boldsymbol{x})\ e^{i\,\boldsymbol{q}\,\cdot\,\boldsymbol{x}}\ d^4x\ ,$$

$$\sigma^{\mu\nu} = \frac{i}{2}\ (\gamma^\mu\gamma^\nu - \gamma^\nu\gamma^\mu)\ ,$$

$$\mathfrak{F}^{\mu\nu} = \frac{\partial A^\mu}{\partial x_\nu} - \frac{\partial A^\nu}{\partial x_\mu}\ ,\ \text{etc.}\ ,$$

we have

$$M_s = 2\,\Lambda\ (2\ M)^2\,\frac{1}{(2\pi)^4}\int d^4x\ e^{i\,\boldsymbol{p}_2\,\cdot\,x}$$

$$\bar{u}_2\{Q\ (0)\ \gamma_\mu A^\mu + P\ (0)\ \sigma_{\mu\nu}\ \mathfrak{F}^{\mu\nu} + \cdots\}\ u_1\,\bar{e}^{\,i\,\boldsymbol{p}_1\,\cdot\,\boldsymbol{x}}. \qquad (\text{II} - 17)$$

Ambiguities

We note first that $P(0)$ is a convergent expression. Care must however be taken in the treatment of $Q(0)$. In $Q(0)$, there occur differences of $K_1\,(0)$, $K_2\,(0)$, $K_3\,(0)$ and $K_4\,(0)$ which are all divergent integrals. Hence $Q(0)$ has an ambiguous value and we may obtain any value we like for it by suitably choosing the method of integration and transformation of variables. The only way of resolving the ambiguity lies in taking recourse to some physical arguments. We have one available in the form of the charge conservation of the nucleon. Since the neutron has to have a charge equal to zero (and the proton equal to e) we must demand that $Q(0)$, which as the coefficient of the $\gamma_\mu A^\mu$-term represents a charge of the neutron, has the value zero. In other words, we simply have to subtract out the $\gamma_\mu A^\mu$-terms independent of $\boldsymbol{q}$. Using this prescription we get

$$M_s = 2\,\Lambda\ (2\ M)^2\,\frac{1}{(2\pi)^4}\int d^4x\ e^{i\,\boldsymbol{p}_2\,\cdot\,\boldsymbol{x}}\ \bar{u}_2\,[P(0) + \sigma_{\mu\nu}\ \mathfrak{F}^{\mu\nu} + \cdots]\ u_1\,\bar{e}^{\,i\,\boldsymbol{p}_1\,\cdot\,\boldsymbol{x}}.$$

The next higher term (proportional to $\boldsymbol{q}^2$) which represents a contribution to the 'neutron-electron interaction' still diverges for pseudovector coupling but is convergent for pseudoscalar coupling. This divergence in

the case of pseudovector coupling is now to be handled with our cut-off and considered as an observable effect. The higher terms would be needed only for an actual scattering but not for the magnetic moment.

If we now specialise to the case where the external field is a static magnetic field $\vec{H}$, then

$$P(0)\,\sigma_{\mu\nu}\,\mathfrak{F}^{\mu\nu} \longrightarrow P(0)\,\vec{\sigma}\cdot\vec{H}.$$

Going over to the two-component Pauli-equation we are able then to interpret it as a magnetic moment effect. Thus the anomalous magnetic moment of the neutron is

$$\mu_N = -\frac{i\,e}{4\,\pi^4}\left(\frac{2\,MF}{\mu}\right)^2 P(0)\ .$$

Since $P(0)$ is the same for the two couplings, we get the same value for μ_N, provided we assume the equivalence of G and $(2\,MF/\mu)$. We shall often put for shortness

$$G = \frac{2\,MF}{\mu}\ .$$

$$\mu_N = -\frac{i\,e}{4\,\pi^4}\,G^2\,P(0)\ .$$

It is to be noticed that the neutron has been 'brought to rest' after splitting the $\sigma_{\mu\nu}\,\mathfrak{F}^{\mu\nu}$ term. Thus the cut-off to be applied to the integrals in $P(0)$ is simply the spherical cut-off to the radius K_0.

By an exactly similar treatment we get for the anomalous magnetic moment of the proton the value

$$\mu_P = -\frac{i\,e}{4\,\pi^4}\,G^2\,P_P(0)$$

where

$$P_P(0) = \tfrac{1}{2}\,M\,[A\,(0) + B_1(0) - B_2\,(0)]. \qquad \text{(II - 18)}$$

We may put our results (in units of $e/2\,M$) now in the following form:

$$\left.\begin{aligned}\mu_N &= -\frac{G^2}{4\,\pi^2}\,\chi_N\,,\\ \mu_P &= \frac{G^2}{4\,\pi^2}\,\chi_P\,,\end{aligned}\right\} \qquad \text{(II - 19)}$$

where

$$\chi_N = \chi_{\text{meson}} + \chi_{\text{nucleon}}\,,$$
$$\chi_P = \chi_{\text{meson}} - \frac{1}{2}\,\chi_{\text{nucleon}}\,.$$

(χ_{meson}) is the contribution from the meson current and (χ_{nucleon}) that due to the nucleon current. After the necessary integrations we have:

$$\chi_{\text{meson}} = \frac{1}{2}\,\frac{ie}{\pi^2}\,MB_2(0)$$

$$-\frac{K_0}{M}\,\frac{1}{\beta^2}\left[\beta^2 - \frac{\eta^4}{4} - \frac{3}{2}\,\eta^2\beta^2 - \frac{1}{8}\,\eta^6\right] \times$$

$$\times \left\{ \frac{1-\frac{\eta^2}{2}}{\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}}} + \frac{\frac{\eta^2}{2}}{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}}} \right\} + \frac{K_0}{M}\left(\eta^2+\beta^2-\frac{3}{4}\,\eta^4\right) \times$$

$$\times \left\{ \frac{1}{\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}}} - \frac{1}{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}}} \right\} + \left(\eta^2-\frac{1}{2}\,\eta^4\right) \times$$

$$\times \log\left\{ \frac{\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}}-\frac{K_0}{M}}{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}}-\frac{K_0}{M}} \cdot \frac{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}}+\frac{K_0}{M}}{\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}}+\frac{K_0}{M}} \right\} -$$

$$-\frac{1}{2\alpha}\left[2\,\eta^2 - 4\,\eta^4 + \eta^6\right] \times$$

$$\times \cos^{-1}\left\{ \frac{\alpha^2}{\eta}\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}} \cdot \frac{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}} - \frac{K_0^2}{M^2} \cdot \frac{\eta}{2}\left(1-\frac{\eta^2}{2}\right)}{\beta^2} \right\},$$

and

$$\chi_{\text{nucleon}} = \frac{ie}{\pi^2}\,M\left[A(0)+B_1(0)\right]$$

$$= \frac{K_0}{M}\,\frac{1}{\beta^2}\left[\frac{3}{2}\,\eta^2\beta^2 - \frac{1}{8}\,\eta^6\right] \times$$

$$\times \left\{ \frac{1-\frac{\eta^2}{2}}{\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}}} + \frac{\frac{\eta^2}{2}}{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}}} \right\} - \frac{K_0}{M}\left(\beta^2-\frac{3}{4}\,\eta^4\right) \times$$

$$\times \left\{ \frac{1}{\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}}} - \frac{1}{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}}} \right\} - \frac{1}{2}\left(\eta^2-\eta^4\right) \times$$

$$\times \log\left\{ \frac{\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}}-\frac{K_0}{M}}{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}}-\frac{K_0}{M}} \cdot \frac{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}}+\frac{K_0}{M}}{\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}}+\frac{K_0}{M}} \right\} - \frac{1}{2\alpha}\left(3\,\eta^4-\eta^6\right) \times$$

$$\times \cos^{-1}\left\{ \frac{\alpha^2}{\eta}\sqrt{1+\frac{K_0^2}{M^2}} \cdot \frac{\sqrt{\eta^2+\frac{K_0^2}{M^2}} - \frac{K_0^2}{M^2}\,\frac{\eta}{2}\left(1-\frac{\eta^2}{2}\right)}{\beta^2} \right\}. \qquad \text{(II — 20)}$$

Here we have put

$$\left.\begin{aligned} \eta &= \frac{\mu}{M} \\ \alpha^2 &= \eta^2 - \frac{\eta^4}{4} \\ \beta^2 &= \alpha^2 + \frac{K_0^2}{M^2} \end{aligned}\right\}. \qquad \text{(II – 21)}$$

In the limit $K_0 = \infty$, the well-known LUTTINGER formulae are obtained.

Below we give a table for our numerical results. The value of η used in this table is $0 \cdot 15$.

K_0	χ_N	χ_P	χ_N/χ_P
M	0·53	0·13	4·1
$2/3\,M$	0·38	0·12	3·2
$1/2\,M$	0·278	0·104	2·67
$1/4\,M$	0·098	0·050	1·96

For $K_0 = \infty$, $\frac{\chi_N}{\chi_P} \simeq 8$. The experimental value for $\frac{\chi_N}{\chi_P}$ is about $1 \cdot 08$.

The ratio of the magnitude of the anomalous moment of the neutron to that of the proton drops from the value of about 8, obtained without any cut-off, to the value of about 3 with a cut-off of $2/3\,M$. The large value of (χ_N/χ_P) is due, as is well known, to the considerable contribution from the nucleon current. The cut-off suppresses it a good deal, thus improving the situation, but it does not suffice to reach complete agreement. This, of course, is impossible in a first order calculation. Phenomenological considerations of the type first made by FRÖHLICH and HEITLER*) using the concept of a probability of dissociation of a nucleon into nucleon plus *one* meson show already that with the observed value of μ/M the magnetic moments can never both be fitted accurately to the observed values. The coupling constant (also then the probability of dissociation) drops out in the ratio $|\mu_N/\mu_P|$, and the value for this ratio is in fact about $1 \cdot 4$ (for $\mu/M = 0 \cdot 15$). Value of the order $1 \cdot 4$ is obtained by us, for this ratio, as the lowest value in the limit $K_0 \to 0$. This shows that we need also the two-meson states for exact fitting.

We may thus expect that the inclusion of higher orders would lead to much more satisfactory results.

*) H. FRÖHLICH and W. HEITLER, Nature *141*, 37 (1938).

Section III

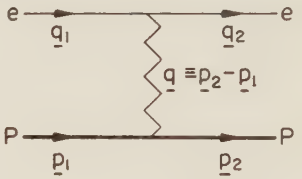
Electron-proton scattering

For this problem we replace the external electromagnetic field of the last section by a quantised electromagnetic field and besides we have to add to the interaction Hamiltonian, (I – 1), a term equal to

$$- e \bar{\psi}^{(e)}_{(x)} \gamma^{\mu\,(e)} \psi^{(e)}_{(x)} A_{\mu}(\mathbf{x})$$

describing the interaction of the quantised electron-field with the electromagnetic field, through which it interacts with the proton.

Then the lowest order matrix element for electron-proton scattering, proportional to e^2, is represented by the following Feynman diagram:



(1) M_2^P

The corresponding matrix element is

$$M_2^P = - ie^2 \frac{1}{(2\pi)^2} \sqrt{\frac{M^2}{E(p_1)\,E(p_2)}} \sqrt{\frac{m^2}{E_e(q_1)\,E_e(q_2)}} (\bar{u}_2 \gamma^{\mu} u_1) (\bar{\omega}_2 \gamma^{(e)}_{\mu} \omega_1) \frac{1}{\boldsymbol{q}^2}$$

$$\delta^{(4)}(\boldsymbol{q}_2 - \boldsymbol{q}_1 + \boldsymbol{p}_2 - \boldsymbol{p}_1) , \qquad \text{(III – 1)}$$

where $\boldsymbol{q}_2, \boldsymbol{q}_1$ are the final and initial electron four-momenta and ω_2 and ω_1 the corresponding Dirac spinors. m is the electron mass, $E_e(q)$ is the electron energy corresponding to momentum $\vec{q}$. The rest of the notation is as in section II (the neutron there being of course here replaced by the proton). Putting

$$\chi = e^2 \frac{1}{(2\pi)^6} \sqrt{\frac{M^2}{E(p_1)\,E(p_2)}} \sqrt{\frac{m^2}{E_e(q_1)\,E_e(q_2)}} \frac{1}{\boldsymbol{q}^2} \delta^4(\boldsymbol{q}_2 - \boldsymbol{q}_1 + \boldsymbol{p}_2 - \boldsymbol{p}_1) \qquad \text{(III – 2)}$$

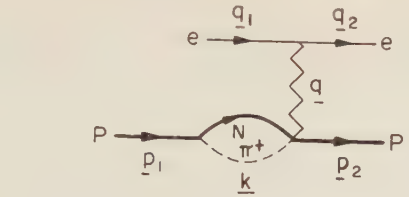
and

$$j_{\mu} \equiv (\bar{\omega}_2 \gamma^{(e)}_{\mu} \omega_1) , \qquad \text{(III – 3)}$$

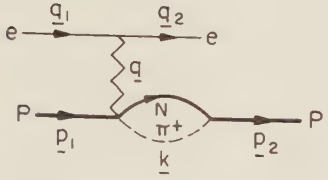
we have

$$M_2^P = - i(2\pi)^4 \chi j_{\mu} (\bar{u}_2 \gamma^{\mu} u_1) . \qquad \text{(III – 4)}$$

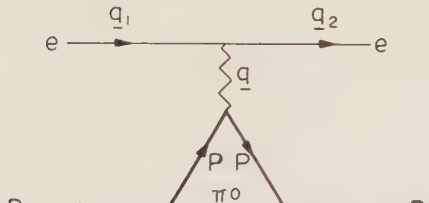
The next higher order matrix elements, proportional to e^2F^2, are represented now by the following Feynman diagrams:



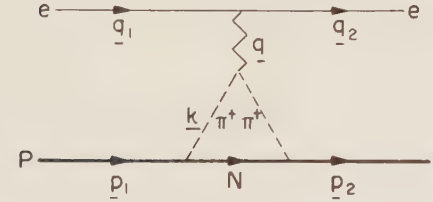
(2) $M_3^{P(1)}$



(3) $M_3^{P(2)}$

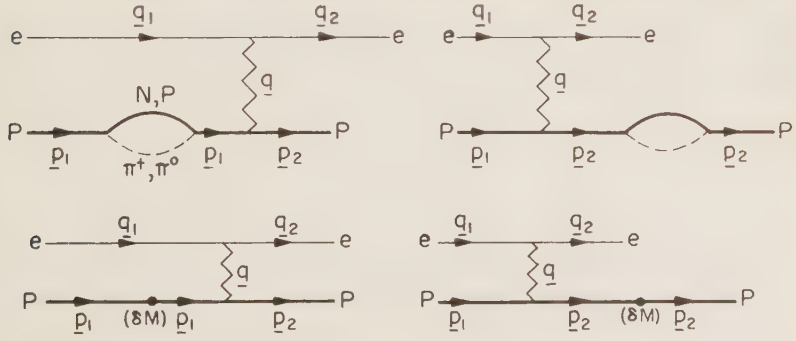


(4) $M_4^{P(1)}$



(5) $M_4^{P(2)}$

Besides these diagrams, we also have four more diagrams due to nucleon mass renormalisation and self-energy of the type shown below:



The matrix elements for all these diagrams have the form

$$M^P \sim \text{const. } \chi j^\nu M_\nu$$

where M_ν is essentially the contribution due to the proton-meson part of the diagram and χj^ν that due to the electron-photon part. The part of M_ν, which does not vanish for $\boldsymbol{q}=0$, is of the form $\bar{u}_2 \gamma_\nu u_1$ (as will be seen below). As explained under 'Ambiguities' in section II, this part (which is again ambiguous) must be subtracted out to maintain the proton charge at the value e -which value has already been taken into account in the lowest order diagram (1). Thus to obtain the result we are calculating we need not consider the above so-called renormalisation diagrams as the proton-meson parts of their matrix elements are independent of $\boldsymbol{q}$ and so will not contribute after this subtraction.

We give now the matrix elements corresponding to the diagrams (2) to (5). They are, respectively

$$\left.\begin{aligned}
M_3^{P(1)} &= -2\left(\frac{F}{\mu}\right)^2 \chi j^\nu \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2 \gamma_\nu \{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_1+\boldsymbol{k})+M\}(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1}{[(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}, \\
M_3^{P(2)} &= 2\left(\frac{F}{\mu}\right)^2 \chi j^\nu \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_2+\boldsymbol{k})+M\}\gamma_\nu u_1}{[(\boldsymbol{p}_2-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}, \\
M_4^{P(1)} &= -\left(\frac{F}{\mu}\right)^2 \chi j^\nu \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_2+\boldsymbol{k})+M\}\gamma_\nu\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_1+\boldsymbol{k})+M\}(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1}{[(\boldsymbol{p}_2-\boldsymbol{k})^2-M^2][(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}, \\
M_4^{P(2)} &= -2\left(\frac{F}{\mu}\right)^2 \chi j^\nu \int \frac{\bar{u}_2\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})\}\{\boldsymbol{\gamma}\cdot(-\boldsymbol{p}_1+\boldsymbol{k})+M\}(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1(2k_\nu+q_\nu)}{[(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2][(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2-\mu^2]}.
\end{aligned}\right\} \quad \text{(III}-5\text{)}$$

Excepting for the factors outside the integrals and the replacement of $\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q})$ by $\boldsymbol{j}$, these are exactly of the same form as the matrix elements we have already discussed in section II. Thus the further reductions and simplifications are easily read off here from the results of section II. Just like there, here also we may combine these matrix elements to the form:

$$\left.\begin{aligned}
M_{\mathrm{I}}^P &= \left(\frac{2MF}{\mu}\right)^2 \chi j_\nu \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\,\gamma^\nu(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1}{[(\boldsymbol{p}_2-\boldsymbol{k})^2-M^2][(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}, \\
M_{\mathrm{II}}^P &= -2\left(\frac{2MF}{\mu}\right)^2 \chi j_\nu \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})\, u_1(2k^\nu+q^\nu)}{[(\boldsymbol{p}_1-\boldsymbol{k})^2-M^2][\boldsymbol{k}^2-\mu^2][(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2-\mu^2]}, \\
M_{\mathrm{III}}^P &= -2\left(\frac{F}{\mu}\right)^2 \chi j_\nu \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2[(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{k})+2M]\, u_1(2k^\nu+q^\nu)}{(\boldsymbol{k}^2-\mu^2)[(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2-\mu^2]}, \\
M_{\mathrm{IV}}^P &= \frac{3}{2}\left[M_3^{P(1)}+M_3^{P(2)}\right]-\left(\frac{F}{\mu}\right)^2 \chi j_\nu \int d^4k \, \frac{\bar{u}_2\gamma^\nu u_1}{[\boldsymbol{k}^2-\mu^2]}.
\end{aligned}\right\} \quad \text{(III}-6\text{)}$$

Here again M_{I}^P, M_{II}^P are equal to the matrix elements one obtains from pseudoscalar coupling provided one writes G for $(2MF/\mu)$. M_{III}^P,

M^P_{IV} arise as extra terms due to pseudovector coupling. Due to these the electron-proton scattering is different for the two couplings.

Corresponding to the equation

$$\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{a}(\boldsymbol{q})=0\,,$$

of section II, we have here

$$\chi\,(\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{j})=0\,.$$

As already mentioned we have to subtract from the proton-meson part of $M^P_{I\to IV}$ the same with $\boldsymbol{q}^2\equiv 0$. This is the statement of our 'charge conservation' for the proton. This removes, as before, the ambiguities. To represent this subtraction we shall use the notation

$$A'(\boldsymbol{q}^2)\equiv A(\boldsymbol{q}^2)-A(\boldsymbol{q}^2=0)\,. \qquad \text{(III}-7\text{)}$$

Using the same methods as used in section II for further simplifying the matrix elements we get

$$\left.\begin{aligned}
M^P_{I} &= \left(\frac{2MF}{\mu}\right)^2 \chi\, j_\lambda\, \bar{u}_2\Big\{(2M^2A+2M^2B_1-K_1)\,\gamma^\lambda + A\boldsymbol{q}^2\gamma^\lambda + \\
&\quad + M(A+B_1)\,[\gamma^\lambda,(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})]\Big\}u_1\,,\\
M^P_{II} &= -2\left(\frac{2MF}{\mu}\right)^2 \chi\, j_\lambda\, \bar{u}_2\Big\{\frac{1}{2}MB_2[\gamma^\lambda,(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})] + 2M^2B_2\gamma^\lambda + \\
&\quad + K_2\gamma^\lambda\Big\}u_1\,,\\
M^P_{III} &= -\left(\frac{F}{\mu}\right)^2 \chi\, j_\lambda\, \bar{u}_2\{k_3\gamma^\lambda\}u_1\,,\\
M^P_{IV} &= \left\{3\left(\frac{2MF}{\mu}\right)^2\int d^4k\int_0^1 dx\,\frac{x}{[\boldsymbol{k}^2-M^2x^2-\mu^2(1-x)]^2} + \right.\\
&\quad \left. + 5\left(\frac{F}{\mu}\right)^2\int d^4k\,\frac{1}{\boldsymbol{k}^2-\mu^2}\right\}\chi\, j_\lambda\,\bar{u}_2\gamma^\lambda u_1\,.
\end{aligned}\right\} \qquad \text{(III}-8\text{)}$$

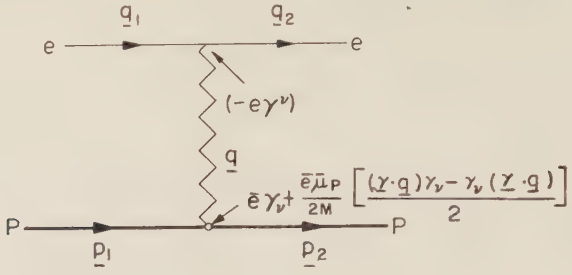
Here the various quantities A, B_1, B_2 etc. are the same as in section (II), equ. (12), (13), (14). Subtracting out the 'ambiguities' we have, for example,

$$M^{P'}_{IV}=0\,.$$

The total effective matrix element is then

$$M^P=M_2+M^{P'}_{I}+M^{P'}_{II}+M^{P'}_{III}+M^{P'}_{IV}=$$
$$-i\,(2\pi)^4\,\frac{1}{e}\,\chi\, j^\mu\left(\bar{u}_2\left\{e\gamma_\mu+\frac{e\mu_P}{2M}\left[\frac{(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})\gamma_\mu-\gamma_\mu(\boldsymbol{\gamma}\cdot\boldsymbol{q})}{2}\right]\right\}u_1\right). \qquad \text{(III}-9\text{)}$$

Schematically we could represent this by the following diagram (the proton-vertex operator being the above effective operator):



The values of $\bar{e}$ and $\bar{\mu}_P$ are:

$$\bar{e} = e\left[1 + \frac{i}{(2\pi)^4}\left(\frac{2MF}{\mu}\right)^2\left\{A\boldsymbol{q}^2 + 2M^2A' + 2M^2B_1' - K_1 - \right.\right.$$
$$\left.\left. - 4M^2B_2' - 2K_2' - \frac{1}{4M^2}K_3'\right\}\right],$$
$$\bar{e}\,\bar{\mu}_P = -\frac{ie}{(2\pi)^4} \cdot 4M^2\left(\frac{2MF}{\mu}\right)^2 (A + B_1 - B_2)\ . \qquad \text{(III} - 10)$$

$\bar{e}$ is the effective proton-charge due to the mesonic effects and $\bar{e}\,\bar{\mu}_P$ represents essentially the effective anomalous magnetic-moment distribution. We introduce for convenience the following notation:

$$F_1 = \frac{\bar{e}}{e} = 1 + \frac{i}{(2\pi)^4}\left(\frac{2MF}{\mu}\right)^2\left[A\boldsymbol{q}^2 + 2M^2A' + 2M^2B_1' - 4M^2B_2' - \right.$$
$$\left. - K_1' - 2K_2' - \frac{1}{4M^2}K_3'\right],$$
$$F_2 = \frac{\bar{e}\,\bar{\mu}_P}{e\,\mu_P} = \frac{A + B_1 - B_2}{A(0) + B_1(0) - B_2(0)}, \qquad \text{(III} - 11)$$

where μ_P is our theoretical anomalous magnetic moment of the proton. F_1 can be interpreted as the charge form factor and F_2 as the magnetic moment form factor. They are simply functions of $\boldsymbol{q}^2$ and naturally of the cut-off value K_0. F_2 is the same for both the couplings but F_1 is different in so far as K_3' does not appear in (III − 11) for the case of pseudoscalar coupling.

The differential cross-section for the scattering, from the matrix element (III − 9), has been derived by ROSENBLUTH[3]). It can be written in terms of our F_1 and F_2 in the form

$$\sigma(\theta) = \left(\frac{e^2}{2E}\right)^2 \frac{\cot^2\frac{\theta}{2}\,\mathrm{cosec}^2\frac{\theta}{2}}{1 + \frac{2E}{M}\sin^2\frac{\theta}{2}}\left[F_1^2 - \frac{1}{4}\frac{\boldsymbol{q}^2}{M^2}\left\{2(F_1 + \mu_P F_2)^2\tan^2\frac{\theta}{2} + \right.\right.$$
$$\left.\left. + \mu_P^2 F_2^2\right\}\right]. \qquad \text{(III} - 12)$$

In this formula, θ is the angle of scattering, and E the energy of the incident electrons, in the laboratory system, where the proton is initially at rest ($\vec{p}_1 = 0$). The rest-energy of the electron has been neglected here in comparison with its kinetic energy. In terms of E and θ we have

$$\boldsymbol{q}^2 = \frac{-4E^2 \sin^2 \frac{\theta}{2}}{1 + \frac{2E}{M} \sin^2 \frac{\theta}{2}} \,. \qquad \text{(III – 13)}$$

Since $\vec{p}_1 = 0$, we have

$$\frac{\vec{p}^2}{M^2} \equiv \frac{\vec{p}_2^{\,2}}{M^2} = \varepsilon^2 \left(1 + \frac{\varepsilon^2}{4}\right),$$

where

$$\varepsilon^2 \equiv -\frac{\boldsymbol{q}^2}{M^2}.$$

It should be noted that the ROSENBLUTH formula, (III - 12), was also used by HOFSTÄDTER *et al.*[2]) in their phenomenological interpretation of their experimental data. They then took for μ_P the experimental value and chose for F_1 and F_2 various analytical functions. Here, of course, all these three quantities are derived from meson theory.

Evaluation of F_1, F_2

To evaluate F_1 and F_2, equ. (III – 11), we simply have to evaluate the various integrals occurring there with our cut-off. First we write F_1 and F_2 in the following form

$$F_2 = \frac{\mathfrak{J}_1(\varepsilon^2) + \mathfrak{J}_2(\varepsilon^2) - \mathfrak{J}_3(\varepsilon^2)}{\mathfrak{J}_1(0) + \mathfrak{J}_2(0) - \mathfrak{J}_3(0)} \text{ , for both couplings ;} \qquad \text{(III – 14)}$$

$$F_1 = 1 - \frac{G^2}{16\pi^2}\{f_{PS}\} \text{ , for pseudoscalar coupling ;} \qquad \text{(III – 15)}$$

$$F_1 = 1 - \frac{G^2}{16\pi^2}\{f_{PV}\} \text{ , } \left(G \equiv \frac{2MF}{\mu}\right), \text{ for pseudovector coupling;} \qquad \text{(III – 16)}$$

where

$$f_{PS} = \frac{1}{2}\varepsilon^2 \mathfrak{J}_1 - \mathfrak{J}_1' - \mathfrak{J}_2' - 2\mathfrak{J}_3' + \mathfrak{J}_7 + 2\mathfrak{J}_8 \,, \qquad \text{(III – 17)}$$

$$f_{PV} = f_{PS} + \frac{1}{4}\mathfrak{J}_9 \,. \qquad \text{(III – 18)}$$

In these equations, $\mathfrak{J}_1, \mathfrak{J}_2, \ldots, \mathfrak{J}_9$ are the integrals to be evaluated, defined by:

$$\left.\begin{aligned} A &= -\frac{\pi^2 i}{2M^2}\mathfrak{J}_1;\ B_1 = -\frac{\pi^2 i}{2M^2}\mathfrak{J}_2;\ B_2 = -\frac{\pi^2 i}{2M^2}\mathfrak{J}_3; \\ A(0) &= -\frac{\pi^2 i}{2M^2}\mathfrak{J}_4;\ B_1(0) = -\frac{\pi^2 i}{2M^2}\mathfrak{J}_5;\ B_2(0) = -\frac{\pi^2 i}{2M^2}\mathfrak{J}_6; \\ K_1' &= -\pi^2 i \mathfrak{J}_7;\ K_2' = -\pi^2 i \mathfrak{J}_8;\ K_3' = -\pi^2 i M^2 \mathfrak{J}_9 . \end{aligned}\right\} \qquad \text{(III – 19)}$$

In terms of these integrals, we have also

$$\mu_P = -\frac{G^2}{8\pi^2}\left\{\mathfrak{J}_1 + \mathfrak{J}_2 - \mathfrak{J}_3\right\}_{(\varepsilon^2=0)}. \qquad (\text{III}-20)$$

As an example, we indicate below the evaluation of A. From (II – 12, 13, 14) we have

$$A = 2\int d^4k' \int_0^1 dx \int_0^1 dy \, \frac{y^3 x(1-x)}{(\boldsymbol{k}'^2 + \Delta)^3},$$

where

$$\boldsymbol{k}' = \boldsymbol{k} - \left\{\boldsymbol{p}_1 x + \boldsymbol{p}_2 (1-x)\, y\right\},$$

and

$$\Delta = \Delta(\varepsilon^2) = -M^2\left\{y^2 + \eta^2(1-y) + y^2 x(1-x)\,\varepsilon^2\right\}.$$

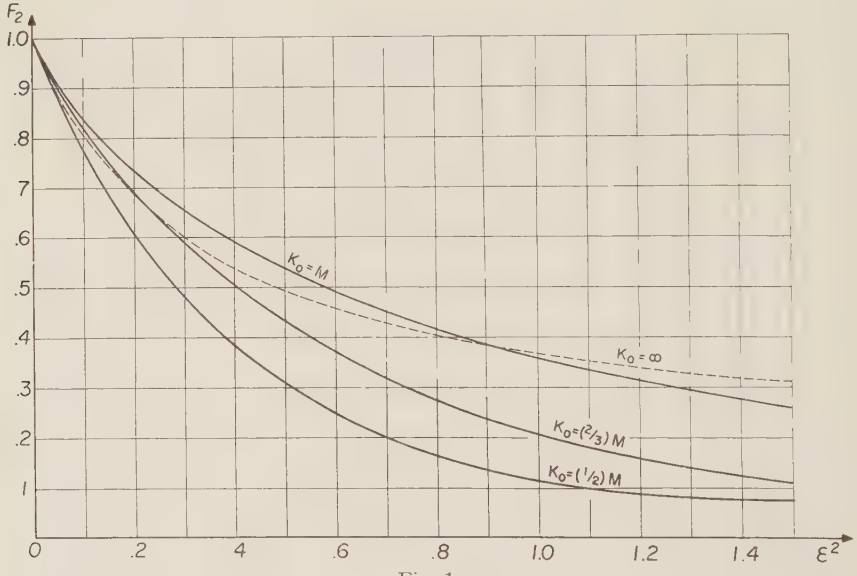


Fig. 1

The magnetic moment from factor F_2 plotted as a function of $\varepsilon^2 (= -\boldsymbol{q}^2/M^2)$ for the cut-off values $K_0 = 1/2\ M,\ 2/3\ M,\ M,\ \infty$.

On performing the integration over k_0' (which is equivalent to k_0 since the limits are infinite) by the usual method, we get

$$A = -\frac{3\pi i}{4}\int_0^1 dx \int_0^1 dy \int d^3\vec{k}' \, \frac{y^3 x(1-x)}{(\vec{k}'^2 - \Delta)^{5/2}}.$$

Now we have to remember that we are working in the laboratory system where $\vec{p}_1 = 0$, and hence $\vec{k}$ is to be cut-off symmetrical to K_0; but here

$$\vec{k}' = \vec{k} - \vec{p}_2\, y(1-x) \equiv \vec{k} - \vec{p}\, y(1-x)$$

so we transform the above integral back to the old $\vec{k}$ variable thus:

$$\int d^3\vec{k}' \int \frac{1}{(\vec{k}'^2 - \Delta)^{5/2}} = \int d^3\vec{k} \frac{1}{[\vec{k}^2 - 2(\vec{k}\cdot\vec{p})y(1-x) + \vec{p}^2 y^2 (1-x)^2 - \Delta]^{5/2}} .$$

The integration over the angles (taking $\vec{p}$ as the axis) is easily performed and it gives:

$$\int d^3\vec{k}' \frac{1}{(k'^2 - \Delta)^{5/2}} = \frac{4\pi}{3} \int_0^{K_0} k^2 dk \frac{1}{2pky(1-x)} \left[\frac{1}{\{[k - py(1-x)]^2 - \Delta\}^{3/2}} - \right.$$

$$\left. - \frac{1}{\{[k + py(1-x)]^2 - \Delta\}^{3/2}} \right] .$$

The integration over k is performed again very easily and we get finally

$$A = -\frac{\pi^2 i}{2M^2} \mathfrak{I}_1$$

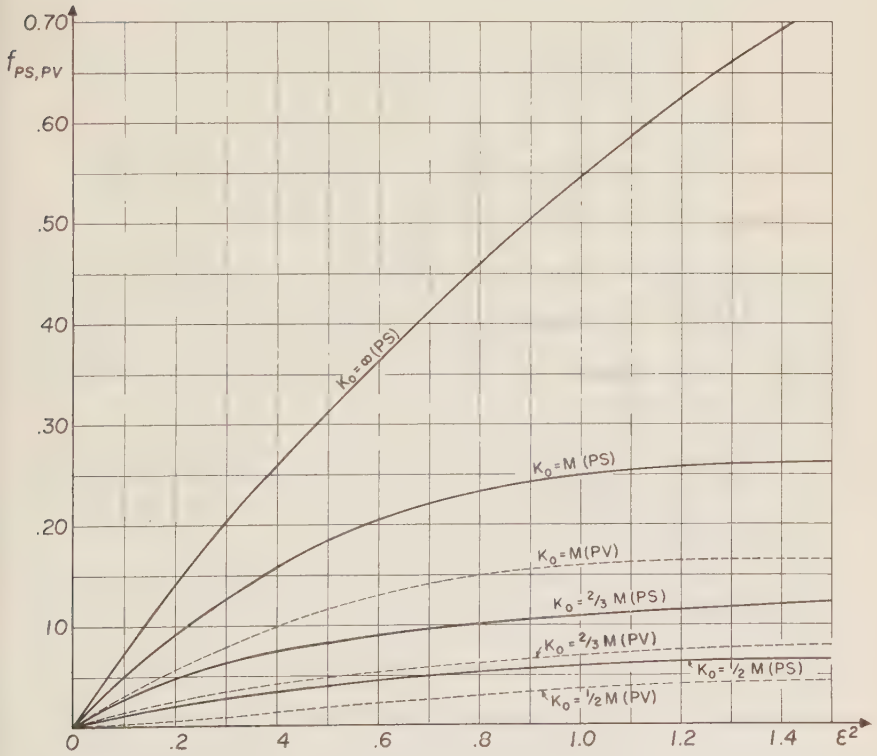


Fig. 2

f_{PS} (continuous curves), f_{PV} (dotted curves) plotted as functions of $\varepsilon^2 (= -\boldsymbol{q}^2/M^2)$ for the cut-off values $K_0 = 1/2\ M,\ 2/3\ M,\ M,\ \infty$. f_{PS}, f_{PV} determine, according to equations (III–15, 16), the charge form factor, F_1, for the pseudoscalar and pseudovector couplings respectively.

*

where

$$\mathfrak{I}_1 = \int_0^1 dx \int_0^1 dy\, f_1(x, y; K_0, \varepsilon^2) \ ,$$

with

$$f_1(x, y; K_0, \varepsilon^2) = \frac{y^2 x}{(p/M)} \left\{ \frac{1}{\sqrt{\left[\frac{K_0}{M} + \frac{p}{M} y(1-x)\right]^2 + y^2 + \eta^2(1-y) + y^2 x(1-x)\varepsilon^2}} - \right.$$

$$\left. - \frac{1}{\sqrt{\left[\frac{K_0}{M} - \frac{p}{M} y(1-x)\right]^2 + y^2 + \eta^2(1-y) + y^2 x(1-x)\varepsilon^2}} \right\} +$$

$$+ \frac{y^3 x(1-x)}{y^2 + \eta^2(1-y) + y^2 x(1-x)\varepsilon^2} \times$$

$$\times \left\{ \frac{\frac{K_0}{M} + \frac{p}{M} y(1-x)}{\sqrt{\left[\frac{K_0}{M} + \frac{p}{M} y(1-x)\right]^2 + y^2 + \eta^2(1-y) + y^2 x(1-x)\varepsilon^2}} + \right.$$

$$\left. + \frac{\frac{K_0}{M} - \frac{p}{M} y(1-x)}{\sqrt{\left[\frac{K_0}{M} - \frac{p}{M} y(1-x)\right]^2 + y^2 + \eta^2(1-y) + y^2 x(1-x)\varepsilon^2}} \right\} .$$

Now the integrations over the variables x and y remain. These are extremely complicated and so we have performed these numerically for some selected values for the parameter K_0 ($= M$, $2/3\,M$, $1/2\,M$, ∞) and the parameter ε^2 ($= 0{\cdot}05$, $0{\cdot}1$, $0{\cdot}3$, $0{\cdot}5$, $0{\cdot}7$, $1{\cdot}0$, $1{\cdot}5$). The same has been done for the other integrals, B_1, B_2, K'_1, etc.

The results of this evaluation are shown in the figures (1), (2), where we have plotted F_2, f_{PS}, f_{PV} as functions of the parameter ε^2, for different values of K_0. From these graphs we may read off the values of F_2, f_{PS}, f_{PV} for any value of ε^2 (up to 1·5) as need be.

For K_0 not too large, the difference between f_{PS} and f_{PV} is not large. This leads even to a smaller difference in cross-sections, since F_2 is the same for both the couplings. But when $K_0 \to \infty$, $f_{PV} \to \infty$.

Results – Cross-sections

Now the cross-section as a function of the laboratory angle of scattering, for various values of the initial electron energy, is easily calculated. The results are shown graphically in figures (3) to (6). These scattering curves have been plotted for the different values of K_0 and for differ-

ent choices of the coupling constant. The experimental points shown for comparison, have been taken from the Stanford dissertation of CHAMBERS[2]). We give besides also theoretical curves for $E = 1000$ Mev, at which energy the experiments have not yet been performed.

Discussion of the results Conclusions

The dependence of the curves on the value of K_0, for fixed values of the energy and coupling constant, is easily understood physically. Let

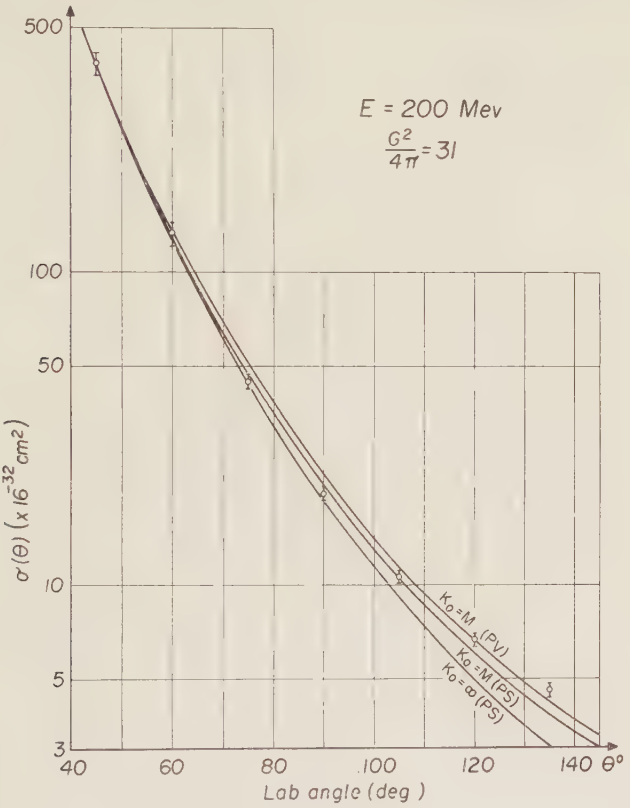


Fig. 3

The differential cross-section for the scattering of 200 Mev electrons plotted as a function of the angle of scattering in the laboratory system. The theoretical curves are drawn for the cut-off value $K_0 = M$ for both pseudoscalar coupling (ps) and pseudovector coupling (pv). The curve drawn for $K_0 = \infty$ is for pseudoscalar coupling (ps); pseudovector coupling gives a divergent result for $K_0 = \infty$. The coupling constant is $G^2/4\pi = 31$. The experimental points shown for comparison are due to CHAMBERS (cf. [2])).

us, for the sake of visualizing the process, use the non-relativistic terminology of the meson-cloud round the fixed heavy nucleon-core. The charge is distributed between the point core (actually a Dirac particle) and the cloud. Then the cut-off K_0 has the effect that, as it decreases from infinity towards the value zero, the meson-cloud extends more and

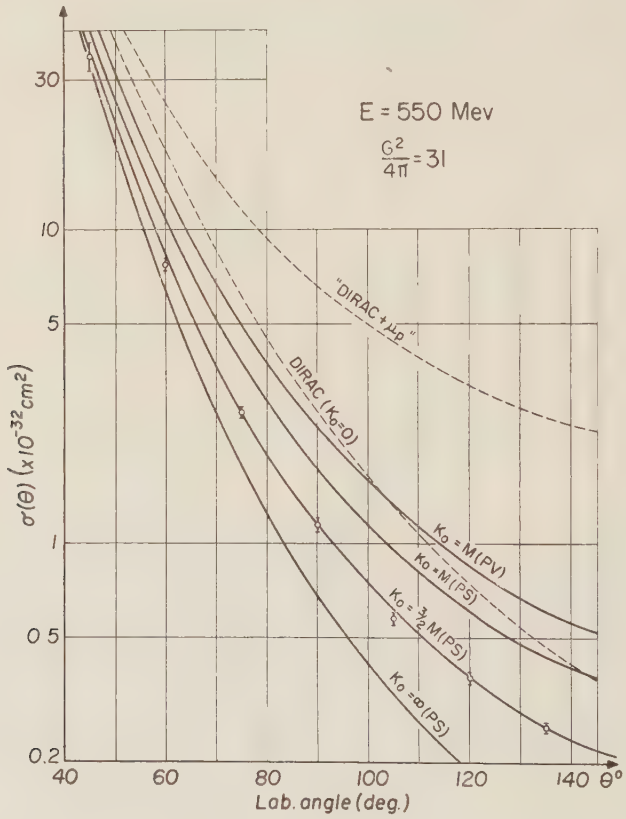


Fig. 4

The differential cross-section for the scattering of 550 Mev electrons plotted as a function of the angle of scattering in the laboratory system. The continous theoretical curves are drawn for the various values of the cut-off constant K_0 indicated. The coupling used is indicated on the curves (*ps* stands for pseudoscalar and *pv* for pseudovector coupling). The coupling constant is $G^2/4\pi = 31$. The lower dotted curve indexed 'Dirac' ($K_0 = 0$), is the scattering curve corresponding to the case when the proton is considered as a point Dirac-particle without any mesonic effects. The upper dotted curve marked, 'Dirac+μ_P' represents the scattering by a point Dirac proton along with a point anomalous magnetic moment of 1·78 nuclear magnetons (described by a Pauli term). The experimental points shown for comparison are due to CHAMBERS (cf. [2]).

more, but the total charge on it becomes less and less till the whole of the charge is on the proton core. Similarly, the anomalous magnetic moment of the proton becomes more extended as K_0 decreases, but its total value vanishes for $K_0 = 0$. Thus, for $K_0 = 0$, we have the proton simply as a point Dirac-particle. Thus, as K_0 decreases the curve moves up to be identified, ultimately, with the curve corresponding to the proton as a Dirac particle (the dotted curve indexed–'Dirac'). This is in contrast to the phenomenological treatment of HOFSTÄDTER *et al.*[2]), where a larger radius (in our case smaller K_0) moves the curves down; but, there the total charge is kept fixed on the extended structure. The curve for the case where the proton is considered as a point Dirac particle with a point anomalous magnetic moment of 1·78 nuclear

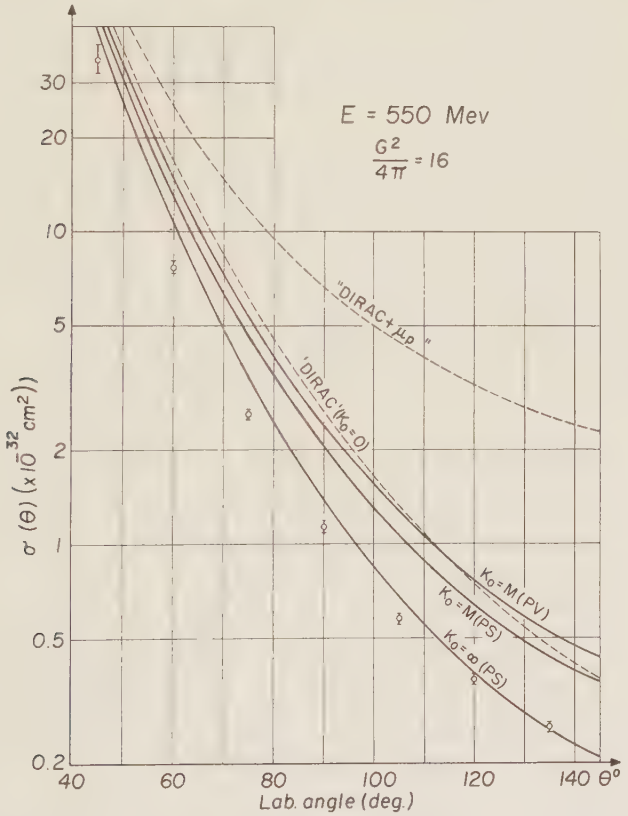


Fig. 5

The differential cross-section for the scattering of 550 Mev electrons plotted as a function of the angle of scattering in the laboratory system. For the indexing and notations see the legend to Fig. 4. The coupling constant used here is $G^2/4\pi = 16$.

magnetons (the dotted curve indexed–'Dirac + μ_P') lies much above all the other curves shown.

Similarly, for a fixed value of K_0 and the electron energy, the variation of the curve with the value of the coupling constant is such that a larger value of the coupling constant implies a more extended structure for the proton as a whole. This is quite clear for when the coupling constant is zero, we have no charge on the meson cloud and the anomalous moment is zero. Both these increase as we increase the value of the coupling constant.

The agreement with experiments is nearly perfect at all energies for the values $G^2/4\pi = 31$ and $K_0 = 3/2\ M$*). For pseudoscalar coupling the

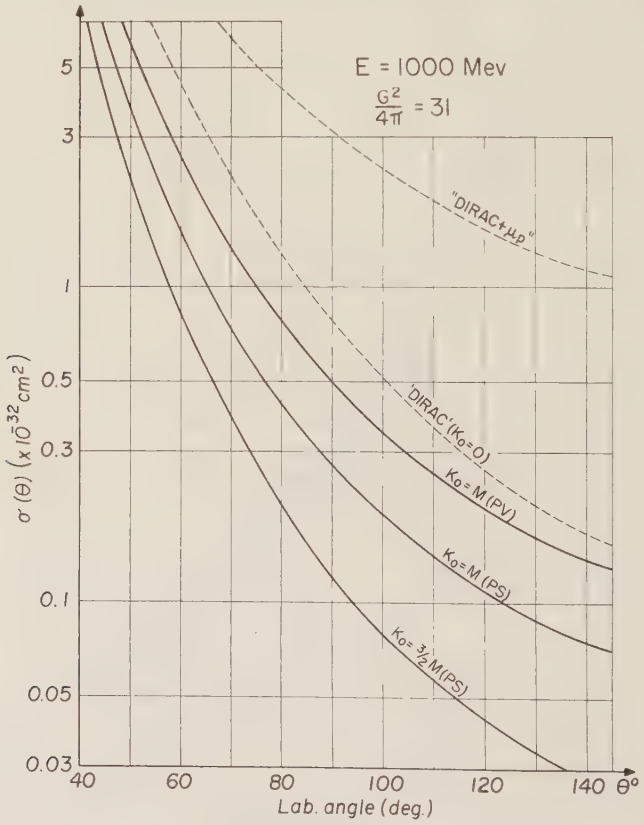


Fig. 6

The differential cross-section for the scattering of 1000 MeV electrons plotted as a function of the angle of scattering in the laboratory system. For the indexing and notations see the legend to Fig. 4. The coupling constant is here given by $G^2/4\pi = 31$. No experimental data is available at this energy so far.

*) The curve for the value $K_0 = 3/2\ M$ has been drawn by interpolation.

choice $K_0 = \infty$ and $G^2/4\pi$ about 16 also gives good agreement. Thus there is a one-parameter choice of the combinations G, K_0 which gives nice agreement for both the couplings (this includes for pseudoscalar coupling also the value $K_0 = \infty$). The constants, for example, $G^2/4\pi \sim 31$ and $K_0 = 3/2\,M$ agree within a factor 2 with the values derived from other phenomena like pion-nucleon scattering, mass difference of π^0 and π^+. Exact agreement can, of course, not be expected since firstly, our calculations are only to the lowest order in perturbation and secondly, the cut-off theory is nothing more than a crude substitute for the future correct theory. In any case we may conclude that meson theory accounts very well for the electron-proton scattering.

It should be noted that from our calculations, we are not able to decide definitely in favour of either of the two couplings used. Both give good agreement depending on the choice of the cut-off value and the coupling constant. But other phenomena like pion-nucleon scattering[5]) show that pseudovector coupling with cut-off is to be definitely preferred*).

Before ending this section some additional remarks about the principle of the cut-off are required. We have applied the cut-off, in this section, to the momentum, $\vec{k}$, of the virtual meson emitted or absorbed by the proton in the initial state, i. e., to the meson-nucleon interaction at the vertex at which the initial proton enters a Feynman diagram. Actually the cut-off must be applied to the *interaction at each vertex*. Consider, as an example, the Feynman diagram number (5) of this section. For the vertex where the initial proton enters the diagram we have the cut-off condition:

$$\left\{\sqrt{(\vec{p}_1 - \vec{k})^2 + M^2} - \sqrt{\vec{k}^2 + \mu^2}\right\}^2 - \vec{p}_1^{\,2} \leqslant \left\{\sqrt{K_0^2 + M^2} - \sqrt{K_0^2 + \mu^2}\right\}^2.$$

This condition is the one used by us. Besides this we have, for the vertex where the final proton leaves the diagram, a condition:

$$\left\{\sqrt{(\vec{p}_1 - \vec{k})^2 + M^2} + \sqrt{(\vec{k} + \vec{q})^2 + \mu^2}\right\}^2 - (\vec{p}_1 + \vec{q}) \leqslant \left\{\sqrt{K_0^2 + M^2} + \sqrt{K_0^2 + \mu^2}\right\}^2.$$

These two conditions are identical only in the case where $\vec{q} = 0$. In the general case ($\vec{q} \neq 0$) we must, naturally, take the superposition of these conditions into account. For this, extremely complicated computations

*) A very common error is prevalent that the γ_5 or *ps*-coupling is equivalent to the gradient or *pv*-coupling in the non-relativistic approximation. This, of course, is not at all true for second order processes where the negative energy intermediate states give the largest contribution for the γ_5-coupling, analogously to the case of Thomson-scattering. The negative energy states cannot be omitted for the γ_5-coupling. The good agreement reached by Chew[15]) for pion-nucleon scattering is due to the using of the gradient (*pv*) coupling.

would be required. But since the values of q in our calculations are not too large (excepting for large angles and large energies) the one condition used by us is a feasible approximation. Much weight can thus not be attached to the calculated scattering curves for 1000 MEV.

Finally, there are also cut-off conditions to be imposed at the vertices where the photon takes part in the interaction. This condition would chiefly limit the values of q for which the present theory is valid. If for the interactions where a photon takes part, the cut-off value is equal to or larger than our K_0 (for the meson-nucleon system), then the values of q used here lie well within the range of validity of the theory.

Section IV

Non-relativistic limit of the anomalous moments

A very often quoted result for the anomalous magnetic moment of the neutron (also equal but opposite in sign for the proton) according to non-relativistic meson theory calculations is (in units of $e/2M$):

$$\mu_N = -\frac{G^2}{4\pi^2} \cdot \frac{1}{M} \int_0^{K_0} d k \cdot k^2 \left(\frac{2}{3} \frac{k^2}{\omega^4}\right) \qquad \text{(IV}-1\text{)} \; ^*)$$

where $$\omega^2 = k^2 + \mu^2$$

and $G = 2MF/\mu$ for pseudovector coupling.

Here there is no nucleon current since the nucleon is considered as a fixed heavy extended source.

Let us compare it with the non-relativistic limit of our covariant calculation for μ_N. We have, as shown in section II,

$$\mu_N = -2 i \Lambda M P(0) = -\frac{G^2}{4\pi^2} \cdot 3 \int_0^{K_0} \frac{d k}{M} \cdot \frac{k^2}{M^2} \int_0^1 d y \frac{y^2}{\{(y-a)^2 + b\}^{5/2}},$$

where the integrations over the variables k_0, x and the angles in $\vec{k}$-space have already been performed and

$$a = \frac{1}{2} \frac{\mu^2}{M^2}; \; b = \frac{k^2}{M^2} + \frac{\mu^2}{M^2} - \frac{1}{4} \frac{\mu^4}{M^4}.$$

---

*) See, for example, G. Salzmann: cf. (5), Equ. (18c), where, of course, we must put $v = 1$ and the upper limit equal to K_0 to compare it with the above calculations.

Now to obtain the non-relativistic limit we integrate over the variable y and then take the lowest term in an expansion according to $1/M$. This gives

$$\mu_N = -\frac{G^2}{4\pi^2} \cdot \frac{1}{M} \int_0^{K_0} d\,k \cdot k^2 \left(\frac{\omega^2}{\omega^4}\right). \qquad \text{(IV-2)}$$

Clearly, the two results (IV-1) and (IV-2) do not agree. The Understanding and removal of this discrepancy is simple but noteworthy. A similar discrepancy was also pointed out recently by HEITLER[7]) in another connection. The situation is clarified if we note that in going over to the non-relativistic limit in a consistent way (by expansion in powers of k/M etc.) a cut-off K_0, smaller than M, is automatically implied. Further, this cut-off, which is invariant in a relativistic theory, must be consistently handled when one goes over to the non-relativistic limit. To bring out this point clearly let us look at the form of our matrix element of section II:

$$M_s \sim \bar{u}_2 \{ Q(0)\ (\gamma \cdot \boldsymbol{a}) + P(0)\ [(\gamma \cdot \boldsymbol{a}), (\gamma \cdot \boldsymbol{q})] + \cdots \} u_1$$

$$\text{i.e.} \sim \bar{u}_2 \{ Q(0)\ \gamma_\mu A^\mu + P(0)\ \sigma_{\mu\nu}\, \mathfrak{F}^{\mu\nu} + \cdots \} u_1 .$$

Here $P(0)$ is essentially the anomalous magnetic moment. It is easily identified; whereas the $Q(0)$-term is separated out and dropped for reasons already discussed in section II. Now if we go over to the non-relativistic Pauli two-component case in the usual manner*) we have for the case of a static magnetic field:

$$\gamma \cdot \boldsymbol{A} \longrightarrow \vec{p}_1 \cdot \vec{A} + \frac{1}{2} \vec{\sigma}, \vec{H}$$

$$\sigma_{\mu\nu}\, \mathfrak{F}^{\mu\nu} \longrightarrow \vec{\sigma}, \vec{H} .$$

Thus in a calculation which is non-relativistic from the start we shall have the $\vec{\sigma} \cdot \vec{H}$-terms mixed up from the two separate type of terms, one being the real observable effect and the other an ambiguous term which must be subtracted out, for its value *must* be zero, since the neutron has a charge equal to zero. To obtain the correct result then, we must not let $\vec{p}_1$ be equal to zero, so that we may recognise, with the help of the $\vec{p}_1 \cdot \vec{A}$-term, the $\vec{\sigma} \cdot \vec{H}$-term (with half the same coefficient as the $\vec{p}_1 \cdot \vec{A}$-term) which must be subtracted out, leaving the rest of the $\vec{\sigma} \cdot \vec{H}$-term as the true anomalous moment effect. But since $\vec{p}_1$ is not zero, the cut-

*) See, for example, W. HEITLER: Quantum Theory of Radiation, Third Edition, pp. 109, 110 (1954).

off cannot be applied symmetrically so that, for instance, the following equations

$$\int d^3k\,(\vec{k}\cdot\vec{A})\,f(\vec{k}^2) = 0\ ,$$

$$\int d^3k\,(\vec{k}\cdot\vec{A})\,(\vec{k}\cdot\vec{B})\,f(\vec{k}^2) = \frac{1}{3}\,(\vec{A}\cdot\vec{B})\int d^3k\,\vec{k}^2\,f(\vec{k}^2)\ ,$$

which are always used in the usual non-relativistic calculations, do not hold any longer. In other words, we have to take the 'deformation' of the source for the moving nucleon into account. This can be done for the present case in a very simple way. Let $\vec{k}$ be the virtual meson momentum corresponding to the nucleon with momentum $\vec{p}_1$ and $\vec{k}'$ that corresponding to the case when $\vec{p}_1 = 0$. Then we have for the invariant z, equ. (I — 2),

$$z^2 = \left\{\sqrt{M^2 + (\vec{p}_1 - \vec{k})^2} + \sqrt{\mu^2 + \vec{k}^2}\right\}^2 - \vec{p}_1^{\,2} - \left\{\sqrt{M^2 + \vec{k}'^2} + \sqrt{\mu^2 + \vec{k}'^2}\right\}^2 .$$

Since we are interested in the non-relativistic conterpart of this equation we compare the two sides after an expansion in powers of $1/M$ and retaining terms only up to $1/M$. Then

$$\omega' \simeq \omega\left[1 - \frac{\vec{p}_1\cdot\vec{k}}{M\omega}\right], \qquad \text{(IV — 3)}$$

$$\omega \equiv \sqrt{k^2 + \mu^2}\ ,\ \omega' \equiv \sqrt{k'^2 + \mu^2}\ .$$

Thus, all the integrals over d^3k which we consider must be transformed to those over d^3k' and then only a symmetrical spherical cut-off to the radius K_0 must be applied.

When this procedure is used consistently the above mentioned discrepancy gets removed and the correct non-relativistic result (IV — 2) and not (VI — 1) is obtained.

We illustrate this by an example. Consider the first terms $M_{\mathrm{I}}^{(1)}$, $M_{\mathrm{II}}^{(1)}$ of equations (II — 7), (II — 8) which correspond to the simpler pseudoscalar coupling. Instead of doing the rest of the calculations convariantly, we consider the case of a static magnetic field,

$$A_0 = 0\ ,\ \vec{A}\,(\vec{x}) = \int \vec{a}\,(\vec{q})\,e^{i\,\vec{q}\cdot\vec{x}}\,d^3q\ ,\ \vec{a}\,(\vec{q})\cdot\vec{q} = 0\ ,$$

integrate out over k_0, expand in powers of $1/M$, and retain the lowest terms till the one which first contains $\vec{\sigma}$. For the sum we have then

$$M^{(N.R.)} \simeq -4\,\pi\,i\,A\,(2M)^2\,\delta\,(q_0)\int \frac{d^3k}{4\,M\omega^4}$$

$$\left[v_2^{\dagger}\left\{-\omega + \frac{i}{M}\,\vec{\sigma}\cdot[\vec{q}\times\vec{k}] + \cdots\right\}v_1\right](\vec{k}\cdot\vec{a}\,(\vec{q}))\ ,$$

where v_2, v_1 are the Pauli spinors and where we have also dropped all

the other terms which do not enter the effect we are calculating. Here we have now

$$\int \frac{d^3k}{\omega^4} (\vec{k}\cdot\vec{a}) \frac{i}{M} \vec{\sigma}\cdot[\vec{q}\times\vec{k}] \simeq \int \frac{d^3k'}{\omega'^4} \frac{1}{3} k'^2 \frac{i}{M} \vec{\sigma}\cdot[\vec{q}\times\vec{a}],$$

the correction due to (IV — 3) being neglected as it will be of an order higher in $1/M$. Now integrating over angles round the axis $\vec{p}_1$:

$$\int \frac{d^3k}{\omega^4} \vec{k}\cdot\vec{a}(-\omega) = -\int d^3k \frac{\vec{k}\cdot\vec{a}}{\omega^3} \text{ *)} = -2\pi \frac{\vec{p}_1\cdot\vec{a}}{p_1} \int_{-1}^{+1} d\cos\theta \int k^2 dk \frac{k\cos\theta}{\omega^3}$$

$$= -2\pi \frac{\vec{p}_1\cdot\vec{a}}{p_1} \int_{-1}^{+1} d\cos\theta \int k'\,dk' \times \left[1 + \frac{p_1\cos\theta}{M}\left(\frac{\omega'}{k'} + \frac{k'}{\omega'}\right)\right] \times$$

$$\times k'^2 \left[1 - 2\frac{\omega'}{k'}\cdot\frac{p_1\cos\theta}{M}\right] \frac{1}{\omega'^3} \left[1 - 3\frac{k'}{\omega'}\frac{p_1\cos\theta}{M}\right] \cos\theta,$$

using the transformation of the variable (IV — 3). Finally

$$\int \frac{d^3k}{\omega^4} \vec{k}\cdot\vec{a}(-\omega) = -4\pi \frac{(\vec{p}_1\cdot\vec{a})}{M} \int_0^{K_0} dk' \frac{k'^2}{\omega'^4} \left\{\frac{1}{3} k'^2 + \mu^2\right\}.$$

Thus we have

$$M^{(N.R.)} \simeq -(4\pi)^2 i \Lambda M \delta(q_0) \int_0^{K_0} dk' \cdot \frac{k'^2}{\omega'^4} v_2^+ \left\{-\frac{\vec{p}_1\cdot\vec{a}}{M}\left(\frac{1}{3}k'^2 + \mu^2\right) + \right.$$

$$\left. + \frac{2}{3} k'^2 \frac{i}{2M} \vec{\sigma}\cdot[\vec{q}\times\vec{a}]\right\} v_1.$$

Subtracting $\vec{p}_1\cdot\vec{a}$-term and along with it the corresponding $\vec{\sigma}$-term we are left with

$$M^{(N.R.)}_{\text{effective}} \simeq -(4\pi)^2 i \Lambda M \delta(q_0) v_2^+ \int_0^{K_0} \frac{dk'}{\omega'^4} k'^2 \left\{\frac{1}{3}k'^2 + \mu^2 + \frac{2}{3}k'^2\right\} \frac{i}{2M}$$

$$\vec{\sigma}\cdot[\vec{q}\times\vec{a}] v_1 = -(4\pi)^2 i \Lambda M \delta(q_0) v_2^+ \int_0^{K_0} dk' \cdot k'^2 \left(\frac{\omega'^2}{\omega'^4}\right) \frac{i}{2M} \vec{\sigma}\cdot[\vec{q}\times\vec{a}] v_1.$$

Remembering that the Fourier transform of $i\vec{\sigma}\cdot[\vec{q}\times\vec{a}]$ is our $\vec{\sigma}\cdot\vec{H}$, we have, as seen easily, the anomalous magnetic moment (dropping the accent on k' now)

$$\mu_N = -\frac{G^2}{4\pi^2} \frac{1}{M} \int_0^{K_0} dk \cdot k^2 \left(\frac{\omega^2}{\omega^4}\right).$$

It should be noted that if we do not treat the $\vec{p}_1\cdot a$-term and the cor-

*) Since the region of integration is not symmetrical, this integral is not zero, as it is usually taken to be.

responding $\tilde{\sigma}$-term as done above and let either $\hat{p}_1$ be zero right at the start or perform the faulty symmetrical $\hat{k}$-integration then we get the wrong often-quoted result (IV — 1).

In this sense we may say that the usual non-relativistic models of meson theory are not really non-relativistic limits of a relativistic theory.

Acknowledgements

I wish to express here my deepest gratitude to my respected teacher, Professor W. HEITLER, for his kind guidance throughout this work. To Dr. E. ARNOUS, Dr. CH. TERREAUX, and Mr. G. KARPMAN I am indebted for many useful discussions. For the use of their electronic calculating machine, I am much obliged to the Director, Prof. E. STIEFEL, and the staff of the Institute for Applied Mathematics of the Swiss Federal Institute of Technology. My grateful thanks are due to the Government of India for the award of the Central States Scholarship. The last stage of the work was supported by a grant from the 'Jubiläumsspende' of the University of Zürich, for which I would like to express my sincerest gratitude.

References

[1]) E. ARNOUS and W. HEITLER, Nuovo Cimento X, *2*, 1282 (1955).
[2]) R. HOFSTÄDTER and R. MCALLISTER, Phys. Rev. *98*, 217 (1955). – R. HOFSTÄDTER and E. E. CHAMBERS, Bull. Am. Phys. Soc. II, *1*, 10 (1956). – R. HOFSTÄDTER, Proc. Sixth Rochester Conference (1956). – E. E. CHAMBERS, Stanford Univ. Dissertation (1956).
[3]) M. N. ROSENBLUTH, Phys. Rev. *79*, 615 (1950).
[4]) M. SLOTNICK and W. HEITLER, Phys. Rev. *75*, 1645 (1949). See there also for the earlier publications. – J. M. LUTTINGER, Helv. Phys. Acta *21*, 483 (1948). – K. M. CASE, Phys. Rev. *76*, 1 (1949). – S. BOROWITZ and W. KOHN, Phys. Rev. *76*, 818 (1949). – B. D. FRIED, Phys. Rev. *88*, 1142 (1952).
[5]) G. F. CHEW, Phys. Rev. *94*, 1748, 1755 (1954); and subsequent papers.
[6]) G. SALZMAN, Phys. Rev. *105*, 1076 (1957).
[7]) W. HEITLER, Nuovo Cimento X, *5*, 302 (1957).

Eine Methode zur direkten Berechnung des Spektrums der von quantenmechanischen Systemen absorbierten bzw. emittierten elektromagnetischen Strahlung

von **H. Primas** und **Hs. H. Günthard**

(Organ.-chemisches Laboratorium der Eidg. Technischen Hochschule, Zürich)

(6. III. 1958)

Zusammenfassung. Die in den elektromagnetischen Spektroskopien beobachtbaren Frequenzen ω_{jk} und Intensitäten A_{jk} der emittierten resp. absorbierten Strahlung werden zu einem idealisierten Spektrum $Q(\omega)$ zusammengefasst:

$$Q(\omega) = \sum A_{jk}\, \delta(\omega - \omega_{jk}).$$

Es wird gezeigt, dass die Fouriertransformierte von $Q(\omega)$ die Eigenschaften einer Korrelationsfunktion $K(t)$ hat und durch die Relation

$$K(t) = \sum_{j<k} A_{jk} \cos(\omega_{jk} t) = \text{Spur}\,\{X(t)X(0)\}$$

mit

$$X(t) = \exp(-iHt)\; P \exp(iHt)$$

gegeben ist. Dabei ist H der Hamiltonoperator des Systems und P der Wechselwirkungsoperator des Systems mit der Strahlung. Dadurch ist es möglich, Spektren ohne Lösung des Eigenwertproblems des Hamiltonoperators H direkt zu berechnen, was sowohl vom theoretischen Standpunkt aus als auch für die praktische Rechnung Vorteile hat. Unter gewissen Voraussetzungen gilt folgende, allgemeinere Relation

$$\mathfrak{K}(t) = 2 \sum_{j<k} A_{jk} \exp(i \mid \omega_{jk} \mid t) = \frac{1}{2} \cdot \text{Spur}\,\{e^{-iHt}\, P^- e^{iHt}\, P^+\}$$

$$P^{\pm} = P_x \pm i P_y .$$

Die Korrelationsfunktion $K(t)$ ist die erzeugende Funktion der Waller-van Vleckschen Momentmethode, für welche Korrekturterme zur Berücksichtigung der natürlichen und apparativen Linienbreite hergeleitet werden. $K(t)$ erlaubt ferner die Aufstellung expliziter Ausdrücke für die Intensitäten in Funktion der Frequenzen. Auf die Möglichkeit, direkt für das idealisierte Spektrum $Q(\omega)$ ein algebraisches Eigenwertproblem zu formulieren, wird hingewiesen. Es wird eine Approximationsmethode angegeben, die eine störungstheoretische (gegenüber unitären Transformationen invariante) Auswertung von $K(t)$ erlaubt.

1. Einleitung

Sehr viele spektroskopische und verwandte experimentelle Methoden fallen unter folgendes allgemeine Schema: Ein quantenmechanisches System habe im stationären Zustand die möglichen, diskreten Energieeigenwerte $E_1, E_2, E_3, \ldots$. Dieses System sei durch einen Operator P an das Strahlungsfeld gekoppelt, und dadurch seien Übergänge zwischen den verschiedenen Zuständen unter Emission oder Absorption elektromagnetischer Strahlung der Frequenz*)

$$\omega_{jk} = E_j - E_k \tag{1-1}$$

ermöglicht. Für solche Fälle gilt bekanntlich in erster Näherung der Strahlungstheorie[1]), dass die Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit vom Zustand j zum Zustand k proportional $|P_{jk}|^2$ ist. Die experimentell beobachtete Intensität der elektromagnetischen Strahlung ist gemäss der Einsteinschen Überlegung noch mit einem statistischen Faktor zu versehen, z. B. mit dem Bolzmann-Faktor, so dass die beobachtbare Intensität proportional wird zu

$$e^{-E_j/kT} \mid P_{jk} \mid^2 . \tag{1-2}$$

Nun liegt oft der Fall vor, dass der Bolzmann-Faktor praktisch konstant ist und dann die Intensität der mit dem Übergang $j \to k$ verknüpften, experimentell beobachtbaren Strahlung proportional**) ist der Grösse A_{jk} (die wir im folgenden kurz als Intensität bezeichnen), mit

$$A_{jk} = \mid P_{jk} \mid^2 . \tag{1-3}$$

Unter experimentell oft erfüllten Bedingungen (keine Sättigung durch das Strahlungsfeld, nicht zu tiefe Temperaturen usw.) fallen die meisten Arten der Spektroskopie unter dieses allgemeine Schema, unter anderem z. B. die optische Spektroskopie mit Atomen und Molekülen, Infrarotspektroskopie, Ramanspektroskopie, magnetische Kern- und Elektronenresonanz, Mikrowellenspektroskopie, Kernquadrupolresonanz usw. In all diesen Fällen stellt die quantenmechanische Berechnung der Frequenzen ω_{jk} und der Intensitäten A_{jk} ein wichtiges Problem dar, das üblicherweise wie folgt behandelt wird:

---

*) Wir setzen im folgenden immer $\hbar = c = 1$.

**) Eigentlich ist die Intensität proportional der Grösse $\omega^n{}_{jk} A_{jk}$ (z. B. $n = 1$ in der Infrarotspektroskopie, $n = 2$ in der Kernresonanzspektroskopie), doch wird wegen ihrer Kleinheit diese Abhängigkeit von der Frequenz oft vernachlässigt. Durch Differentiation der Korrelationsfunktion $K(t)$ von Kap. 2 nach t kann man aber diese Abhängigkeit auch leicht korrekt mitberücksichtigen.

a) H sei der Hamilton-Operator des Systems *ohne* die Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld und *ohne* solche Wechselwirkungen des Systems mit der Umgebung, die zu Linienverbreiterungen Anlass geben. Unter diesen Voraussetzungen ist im allgemeinen H explizite zeit*un*abhängig. Die Lösung des Eigenwertproblems des Operators H

$$H \Phi_j = \lambda_j \Phi_j \tag{1-4}$$

ergibt die Eigenwerte λ_j und die Eigenfunktionen Φ_j.

b) Das experimentell in der Spektroskopie beobachtete Spektrum ist dann gegeben durch

$$G(\omega) = \sum_{j,k} g_{jk}(\omega - \omega_{jk}), \tag{1-5}$$

wobei g_{jk} die shapefunction einer einzelnen Spektrallinie mit der Zentrumsfrequenz ω_{jk} ist. Die Zentrumsfrequenz ω_{jk} ist in ausgezeichneter Näherung gegeben durch

$$\omega_{jk} = \lambda_j - \lambda_k \tag{1-6}$$

und die Intensität A_{jk} ebenfalls in guter Näherung durch

$$A_{jk} = \int_{-\infty}^{\infty} g_{jk}(x)\, dx = |(\Phi_j \mid P \mid \Phi_k)|^2. \tag{1-7}$$

Die Berechnung der Frequenzen ω_{jk} und der Intensitäten A_{jk} durch explizite Lösung des Eigenwertproblems (1-4) und durch Benützung von Gleichung (1–6) und (1–7) hat aber verschiedene Nachteile, von denen wir lediglich zwei erwähnen möchten.

Erstens ist vom theoretischen Standpunkt aus die Berechnung der Frequenzen durch die Differenzbildung (1–6) nicht sehr befriedigend, da es dann schwierig scheint, allgemeine Aussagen über eine allfällige Entartung der Frequenzen ω_{jk} zu machen. Zwar erhält man durch eine gruppentheoretische Behandlung des Eigenwertproblems (1–4) des Hamilton-Operators H leicht eine vollständige Übersicht über die möglichen Entartungen der Eigenwerte λ_i von H, jedoch nicht über eventuelle Entartungen der *Differenzen* der Eigenwerte. Nun ist es aber wohl bekannt, dass es Operatoren gibt, bei denen die Differenzen der Eigenwerte entartet sind. Ein solcher Operator ist beispielsweise die z-Komponente eines Spinoperators, dessen Eigenwerte eine äquidistante Folge bilden. Die Untersuchung, wie solche entartete Differenzen der Eigenwerte (die ja den beobachtbaren Resonanzfrequenzen entsprechen) unter dem Einfluss von Störoperatoren aufspalten, ist z. B. in der Kernresonanzspektroskopie wichtig und kann nach der üblichen Methode meist nur durch explizite Rechnung geschehen. Es ist somit schwierig, eine generelle Übersicht zu erhalten.

Ein zweiter Nachteil betrifft die praktische, explizite Rechnung. Es ist unökonomisch, die Eigenfunktionen explizite zu berechnen und die

dadurch erhaltene detaillierte Information über das System durch den Mittelungsprozess der Berechnung der Matrixelemente nach Gleichung (1–7) zu einem grossen Teil wieder zu verlieren.

Im folgenden Kapitel werden wir zeigen, dass es möglich ist, die oft allein interessierenden Grössen ω_{jk} und A_{jk} direkt zu berechnen, *ohne dass man zuvor das Eigenwertproblem des Hamilton-Operators H zu lösen hat.* Es zeigt sich, dass sich das Spektrum in einer geschlossenen, übersichtlichen Weise analytisch darstellen lässt, die sowohl zur allgemeinen theoretischen Diskussion als auch zur praktischen Auswertung geeignet ist und die die oben erwähnten Umwege vermeidet.

In Kapitel 3 und 4 werden wir zeigen, dass verschiedene, aus speziellen Anwendungen bekannte Methoden und Sätze sich leicht als Spezialfälle der Hauptformel von Kapitel 2 ergeben und sehr allgemeine Gültigkeit haben. In Kapitel 5 beschreiben wir u. a. ein Approximationsverfahren für die Berechnung des spektroskopisch beobachtbaren Spektrums, das gegenüber der konventionellen Störungsrechnung bedeutende Vorteile aufweist.

Auf eine explizite Auswertung der in dieser Arbeit hergeleiteten Relationen für den Fall der Kernresonanzspektroskopie kommen wir in einigen folgenden Arbeiten[2]) zurück. Eine Anwendung auf den Wilsonschen Formalismus der Berechnung von Infrarotspektren (FG-Methode) macht einige Modifikationen nötig, auf die wir an anderer Stelle zurückkommen[3]) *).

2. Berechnung des Spektrums aus einer verallgemeinerten Korrelationsfunktion

21. Hauptsatz

In dem spektroskopisch beobachtbaren Spektrum $G(\omega)$

$$G(\omega) = \sum_{j,k} g_{jk}(\omega - \omega_{jk}) \,. \tag{21–1}$$

wobei g_{jk} die shapefunction der Spektrallinie des Überganges $j \to k$ ist, sind die Zentrumsfrequenzen ω_{jk} und die Linienintensitäten A_{jk}

$$A_{jk} = \int_{-\infty}^{\infty} g_{jk}(x)\, dx \tag{21–2}$$

*) Der Hauptsatz dieser Arbeit ist eine Verallgemeinerung eines von uns früher bewiesenen Satzes der Infrarotspektroskopie (vgl. [8]). Manche Resultate des Hauptsatzes sind in der Literatur bekannt, z. B. in der Theorie der Linienbreite und der Relaxation[14]). Anwendungen zur Berechnung eines (idealisierten) Spektrums sind bisher keine bekannt geworden. Das Korollar sowie die expliziten Ausdrücke für die Intensitäten (4–2) und die Approximationsmethode Kap. 6 scheinen neu zu sein.

aus einem vereinfachten Hamilton-Operator (ohne Wechselwirkungsoperator mit der Strahlung und ohne Wechselwirkungen, die zu Linienverbreiterungen führen) gemäss Gl. (1-4), (1 6) und (1-7) in guter Näherung berechenbar. Wir können diese Grössen zu einem idealisierten Spektrum $Q(\omega)$

$$Q(\omega) = \sum_{j,k} A_{jk}\, \delta(\omega - \omega_{jk}) \tag{21-2}$$

zusammenfassen. Für den Fall verschwindender Linienbreiten geht das beobachtbare Spektrum $G(\omega)$ in das idealisierte Spektrum $Q(\omega)$ über. Der folgende Hauptsatz zeigt, dass die Fouriertransformierte $K(t)$ von $Q(\omega)$

$$K(t) = \int_{-\infty}^{\infty} Q(\omega)\, e^{i\omega t}\, d\omega = \sum_{j,k} A_{jk} \exp(i\omega_{jk} t) \tag{21-3}$$

die Eigenschaften einer Korrelationsfunktion hat und direkt aus den Operatoren H und P berechenbar ist.

Hauptsatz

H sei ein beliebiger, explizite zeitunabhängiger, hermitischer Operator*) mit den Eigenwerten λ_j und den Eigenfunktionen Φ_j

$$H\Phi_j = \lambda_j \Phi_j\,;$$

weiter bedeute

$$\omega_{jk} = \lambda_j - \lambda_k$$

$$A_{jk} = |(\Phi_j \mid P \mid \Phi_k)|^2 = |P_{jk}|^2,$$

wobei P ein beliebiger hermitischer, von der Zeit explizite unabhängiger Operator sei, der in der Eigenbasis des Hamiltonoperators H keine Diagonalelemente aufweise.**) Dann gilt für die Fouriertransformierte des Spektrums $Q(\omega)$

$$K(t) = 2 \sum_{j<k} A_{jk} \cos \omega_{jk} t - \text{Spur}\{X(t)\, X(0)\} \tag{21-4}$$

mit

$$X(t) = e^{-iHt} P e^{iHt},\ X(0) = P. \tag{21-5}$$

Beweis: Da die Spur in einer beliebigen Basis berechnet werden kann, darf die Eigenbasis von H gewählt werden. Damit folgt:

$$K(t) = Sp\{e^{-iHt} P e^{iHt} P\} = \sum_{j,k} e^{-i\omega_{lkt}} P_{jk} P_{kj}$$

$$= \sum_{j,k} e^{-i\omega_{jkt}} A_{jk} = 2 \sum_{j<k} A_{jk} \cos \omega_{jk} t\,.$$

*) Wir nehmen immer an, dass H nur ein diskretes, endliches Spektrum habe. Die Sätze lassen sich auf allgemeinere Fälle ausdehnen.

**) Hat P Diagonalelemente, so tritt in $K(t)$ noch ein konstanter Term auf. Für praktisch wichtige Fälle ist die Voraussetzung des Satzes erfüllt.

Dass $K(t)$ reell ist, folgt aus der Hermitezität von $X(t)$ und damit von $(X(t)\,X(0) + X(0)\,X(t))$ unter Berücksichtigung, dass $Sp(AB) = Sp(BA)$ und dass die Spur eines hermiteschen Operators reell ist.

Dieser Satz ist im wesentlichen eine Analogie und Verallgemeinerung des Satzes von KHINTCHINE-WIENER, nach welchem die Korrelationsfunktion einer Zeitfunktion die Cosinus-Fouriertransformierte ihrer Spektraldichte ist. Im vorliegenden Falle ist $K(t)$ die Korrelationsfunktion der Heisenbergdarstellung $X(t)$ des Wechselwirkungsoperators P mit dem Strahlungsfeld, wobei die Mittelwertsbildung durch die Spur bewerkstelligt ist. Wegen der Invarianz der Spur gegenüber unitären Transformationen folgt auch hier die bei Korrelationsfunktionen übliche Stationarität. Es sei noch erwähnt, dass in Gl. (21–4) bereits alle Auswahlregeln implizite enthalten sind. Bei der Auswertung der Spur (21 4) braucht man also keinerlei Auswahlregeln zu berücksichtigen.

22. *Verallgemeinerung des Hauptsatzes*

Ist die Korrelationsfunktion $K(t)$ des Hauptsatzes in der Form $\sum A_{jk} \cos(\omega_{jk} t)$ explizite bekannt, so sind die Frequenzen ω_{jk} und die Intensitäten A_{jk} ebenfalls explizite bekannt, und es kann somit jede beliebige Funktion der ω_{jk} und der A_{jk} berechnet werden. Ist der Hamilton-Operator H kompliziert, so kann man nicht immer ohne weiteres die explizite Darstellung von $K(t)$ in Form einer trigonometrischen Reihe erhalten. Trotzdem sind aber aus der Spurdarstellung von $K(t)$ gewisse Funktionen der ω_{jk} und der A_{jk} sofort herzuleiten, so z. B. die in Kap. 3 behandelten *geraden* Momente der shape function (dies sind im wesentlichen die Entwicklungskoeffizienten der Entwicklung von $K(t)$ nach Potenzen von t). Die ungeraden Momente sind im Prinzip ebenfalls aus $K(t)$ herleitbar, jedoch nicht in der einfachen Weise wie die geraden Momente. Im vorstehenden Korollar geben wir für den Fall, dass P ein Vektoroperator ist (z.B. das elektrische oder magnetische Dipolmoment) eine allgemeinere Form des Hauptsatzes, die zwar nicht mehr Information liefert, aber z. B. die Berechnung der ungeraden Momente in derselben einfachen Weise wie für die geraden Momente erlaubt.

Korollar zum Hauptsatz

Es sei H der Hamilton-Operator und $\boldsymbol{F} = (F_x, F_y, F_z)$ der Operator des Gesamtdrehimpulses des betrachteten Systems. Ausser den Voraussetzungen des Hauptsatzes gelte weiter:

a) H sei invariant gegenüber Drehungen um die z-Achse, d. h. es sei

$$[H, F_z] = 0\,. \qquad (22\text{–}1)$$

b) Es sei $\boldsymbol{P} = (P_x, P_y, P_z)$ ein Vektoroperator, der die folgenden Vertauschungsrelationen erfülle:

$$[F_x, P_y] = -[F_y, P_x] = iP_z \text{ usw.} \tag{22-2}$$

c) Wegen der Vertauschbarkeit (22–1) kann man eine Basis $\{\Psi_{\alpha m}\}$ finden, in der sowohl F_z als auch H diagonal ist,

$$F_z \psi_{\alpha m} = m \psi_{\alpha m} \tag{22–3}$$

$$H \psi_{\alpha m} = \lambda_{\alpha m} \psi_{\alpha m} . \tag{22–4}$$

Wir setzen voraus, dass gilt

$$\lambda_{\alpha, m+1} - \lambda_{\beta, m} > 0 \quad \text{für alle } \alpha, \beta . \tag{22–5}$$

Dann gilt:

$$\Re(t) = 2 \sum_{j<k} A_{jk} \exp(i \mid \omega_{jk} \mid t) = \frac{1}{2} Sp\{ e^{-iHt} P^- e^{iHt} P^+ \} . \tag{22-6}$$

d. h.:

$$2 \sum_{j<k} A_{jk} \cos(\omega_{jk} t) = Sp\{ e^{-iHt} P_x e^{iHt} P_x \} \tag{22–7}$$

$$= Sp\{ e^{-iHt} P_y e^{iHt} P_y \} \tag{22–8}$$

$$2 \sum_{j<k} A_{jk} \sin(\mid \omega_{jk} \mid t) = Sp\{ e^{-iHt} P_x e^{iHt} P_y \} \tag{22–9}$$

$$= -Sp\{ e^{-iHt} P_y e^{iHt} P_x \} , \tag{22–10}$$

wobei

$$P \qquad P_x \pm iP_y .$$

Beweis:

a) Mit der bekannten Relation

$$e^{-iAt} B e^{+iAt} = \sum_{s=0}^{\infty} \frac{(it)^s}{s!} C_s[B, A] , \tag{22–11}$$

wobei $C_s[B, A]$ die sukzessiven Kommutatoren von B mit A sind,

$$\begin{gathered} C_0[B, A] = B , \quad C_1[B, A] = [B, A] = BA - AB \\ C_{n+1}[B, A] = C_n\big[[B, A], A\big] \end{gathered} \tag{22–12}$$

folgt aus den Vertauschungsrelationen (22–2):

$$\exp(-iF_z \vartheta) P_{x, y} \exp(iF_z \vartheta) = P_{x, y} \cdot \cos\vartheta \pm P_{y, x} \cdot \sin\vartheta .$$

Wegen der Vertauschbarkeit von H mit F_z (Gl. 22–1) und der Invarianz der Spur gegenüber unitären Transformationen folgt durch Transformation mit dem Operator $\exp(iF_z \pi/2)$:

$$K(t) = Sp\{ e^{-iHt} P_x e^{iHt} P_x \} = Sp\{ e^{-iHt} P_y e^{iHt} P_y \}$$

und

$$Sp\{ e^{-iHt} P_x e^{iHt} P_y \} = -Sp\{ e^{-iHt} P_y e^{iHt} P_x \} .$$

b) Unterwerfen wir beide Seiten der Gleichung

$$K(t) = 2 \sum_{j<k} A_{jk} \cos(\omega_{jk} t) = Sp\{e^{-iHt} P_x e^{iHt} P_x\}$$

der HILBERTschen Integraltransformation (HW = Hauptwert)

$$\mathfrak{H}[f(t)] = (1/\pi)\, HW \int_{-\infty}^{\infty} f(t) \cdot (t-\tau)^{-1}\, dt\,,$$

so finden wir wegen[4])

$$\mathfrak{H}[\cos(at)] = -\sin(|a|\tau)$$
$$\mathfrak{H}[\exp(iat)] = i \cdot sg(a) \cdot \exp(ia\tau)$$

a reell mit $sg(a) = +1$ für $a > 0$, $sg(a) = -1$ für $a < 0$

für die HILBERTtransformierte von $K(t)$:

$$\mathfrak{H}[K(t)] = -2 \sum_{j<k} A_{jk} \sin(|\omega_{jk}|\tau) = Sp\{\mathfrak{H}[e^{-iHt} P_x e^{iHt}] P_x\}\,.$$

Die Grösse $R = \mathfrak{H}[e^{-iHt} P_x e^{iHt}]$ werten wir in der gemeinsamen Eigenbasis von H und F_z aus (vgl. Gl. 22–3 und 22–4):

$$R_{\alpha m,\,\beta m'} = \mathfrak{H}[\exp\{-i(\lambda_{\alpha m} - \lambda_{\beta m'})\, t\} \cdot (P_x)_{\alpha m,\,\beta m'} =$$
$$= -i \cdot sg(\lambda_{\alpha m} - \lambda_{\beta m'}) \cdot \exp\{-i(\lambda_{\alpha m} - \lambda_{\beta m'})\,\tau\} \cdot (P_x)_{\alpha m,\,\beta m'}\,.$$

Wegen der Vertauschungsrelation (22-2) gilt[5])

$$(P_x)_{\alpha m,\,\beta m'} = (P_y)_{\alpha m,\,\beta m'} = 0, \text{ falls } m' \neq m \pm 1$$
$$(P_x)_{\alpha m,\,\beta m \pm 1} = \mp i \cdot (P_y)_{\alpha m,\,\beta m \pm 1}\,,$$

so dass mit Voraussetzung (22–5)

$$sg(\lambda_{\alpha m} - \lambda_{\beta m \pm 1}) = sg(\mp 1) = \mp 1$$

folgt:

$$R_{\alpha m,\,\beta m \pm 1} = \pm i \cdot \exp\{-(\lambda_{\alpha m} - \lambda_{\beta m \pm 1})\,\tau\}\,(P_x)_{\alpha m,\,\beta m \pm 1}$$
$$- \exp\{-i(\lambda_{\alpha m} - \lambda_{\beta m \pm 1})\,\tau\}\,(P_y)_{\alpha m,\,\beta m \pm 1}\,,$$

$$R = e^{-iH\tau} P_y e^{iH\tau}\,,$$

und damit folgt sofort der zu beweisende Satz.

Aus dem Beweis folgt, dass die Voraussetzung (22–5) notwendig ist, d. h. also dass das Korollar falsch wird, wenn diese Voraussetzung nicht erfüllt ist. Diese Voraussetzung scheint aber aus physikalischen Gründen meist erfüllt zu sein, denn die Auszeichnung der z-Achse geschieht immer durch ein äusseres Feld (elektrisches oder magnetisches), und bei genügend hohen Feldstärken dürfte die Voraussetzung (22–5) immer zutreffen. Ist die Voraussetzung bei hohen Feldstärken erfüllt, so muss wegen der stetigen Abhängigkeit der Eigenwerte von der Feldstärke und wegen des Kreuzverbotes zweier Terme die Relation (22–5) unabhängig von der Feldstärke gelten*).

*) Zur Begründung des Kreuzverbotes muss man voraussetzen, dass der Hamiltonoperator für alle nichtverschwindenden Feldstärken dieselbe Symmetriegruppe aufweist. Mathematisch sind Ausnahmefälle denkbar, die jedoch kaum physikalisch realisiert werden können.

Da die Funktion $\mathfrak{K}(t)$ durch Addition eines durch Hilbert-Transformation von $K(t)$ erzeugten Imaginärteils zu $K(t)$ entstanden ist

$$\mathfrak{K}(t) = K(t) + i\,\mathfrak{H}[K(t)]\,, \tag{22-11}$$

folgt, dass $\mathfrak{K}(t)$ eine analytische Funktion in der ganzen oberen Halbebene ist, und dass die Fouriertransformierte von $\mathfrak{K}(t)$ für negative ω verschwindet und für positive gleich dem Spektrum $Q(\omega)$, d. h. der Fouriertransformierten von $K(t)$ ist:

$$\int_0^\infty Q(\omega)\, e^{i\omega t}\, d\omega = \mathfrak{K}(t)\,, \tag{22-12}$$

3. Intensitäts-Summensätze und Wallersche Momentenmethode

Von Waller[6]) stammt eine Methode zur Berechnung des zweiten und vierten Moments der shapefunction, die von van Vleck[7]) in einer bekannten Arbeit auf die Kernresonanzspektren von Festkörpern angewandt wurde. Wir werden zeigen, dass die Korrelationsfunktion des Hauptsatzes bzw. die verallgemeinerte Funktion des Korollars *erzeugende Funktionen der von* Waller *und* van Vleck *benutzten Momente sind.*

Im folgenden werden wir die Summensätze für einen im Sinne des Korollars um die z-Achse rotationsinvarianten Hamilton-Operator H herleiten. Jedoch sind die folgenden Summenrelationen S_n für gerades n allgemeingültig, da diese auch aus der allgemeingültigen Gl. (21-4) hergeleitet werden können. Für einen nicht rotationsinvarianten Hamilton-Operator müssen die Intensitätssummensätze für ungerades n speziell und unter Berücksichtigung der Anisotropie des Hamilton-Operators hergeleitet werden.

Durch Entwicklung nach Potenzen von t von beiden Seiten von Gl. (22-6) erhält man durch Koeffizientenvergleich ein vollständiges System von Intensitätssummensätzen. Mit den Gleichungen (22-11) und (22-6) erhält man:

$$S_n = \sum_{j<k} |\,\omega_{jk}^n\,|\, A_{jk} = \frac{1}{4}\,\mathrm{Spur}\,\{\,C_n\,[P^-, H]\cdot P^+\}\,. \tag{3-1}$$

wobei C_n der n-te Kommutator gemäss Gl. (22-12) ist.

Diese Relationen für S_0, S_2 und S_4 wurden von Waller, van Vleck und anderen benutzt, um mit Hilfe der experimentell bestimmten zweiten und vierten Momente der shapefunction Informationen über das untersuchte Kernspinsystem zu erhalten. Wir möchten aber darauf hinweisen, dass die nach Gl. (3-3) berechneten Momente S_n sich auf ein idealisiertes Spektrum beziehen, bei welchem alle Linien eine ver-

schwindende Linienbreite haben, d. h. δ-Funktionen sind. Eine exakte Relation zwischen den experimentell bestimmten Momenten und den Intensitätssummen S_n kann man wie folgt herleiten. Der durch Vernachlässigung der Linienverbreiterung vereinfachte Hamilton-Operator H ergibt die Zentrumsfrequenzen ω_{jk} und die Intensitäten A_{jk} der einzelnen Linien. Die Linienverbreiterung der j, k-ten Linie beschreiben wir durch eine shapefunction $g_{jk}(\omega - \omega_{jk})$, wobei wir gleichzeitig auch eine allfällige Linienverbreiterung durch apparative Einflüsse mitberücksichtigen können. Von den Funktionen g_{jk} setzen wir lediglich voraus, dass ihre n-ten Momente $\mu_n(j, k)$ existieren und dass sie so normiert seien, dass das nullte Moment gleich der Linienintensität A_{jk} sei und das erste Moment verschwinde:

$$\int_{-\infty}^{\infty} g_{jk}(x)\,dx = A_{jk}\,, \qquad \int_{-\infty}^{\infty} x g_{jk}(x)\,dx = 0$$
$$\int_{-\infty}^{\infty} x^n\, g_{jk}(x)\,dx = \mu_n(j, k) \qquad (n = 2, 3, \ldots)\,. \tag{3–2}$$

Das experimentell beobachtete Spektrum ist durch die shapefunction $G(\omega)$ beschrieben,

$$G(\omega) = \sum_{j<k} g_{jk}(\omega - |\,\omega_{jk}\,|)\,. \tag{3–3}$$

deren n-te Momente gegeben sind durch:

$$M_n = \int_0^{\infty} \omega^n\, G(\omega)\,d\omega = \sum_{j<k} \int_{-\omega_{jk}}^{\infty} (x + |\,\omega_{jk}\,|)^n\, g_{ik}(x)\,dx$$
$$\approx \sum_{j<k} \int_{-\infty}^{\infty} (x + |\,\omega_{jk}\,|)^n\, g_{jk}(x)\,dx\,.$$

Die letzte approximative Gleichung gilt sehr genau, da ja meist die Linienbreite einer einzelnen Linie sehr viel kleiner ist als ihre Zentrumsfrequenz. Durch Entwicklung nach dem binomischen Satz und mit Gl. (3-1) folgt damit:

$$\boxed{M_n = S_n + \sum_{p=2}^{n} \binom{n}{p} \sum_{j<k} |\,\omega_{jk}^{n-p}\,|\,\mu_p(j, k)} \qquad n > 1\,. \tag{3–4}$$

also insbesondere:

$$M_0 = S_0\,,\ M_1 = S_1\,,\ M_2 = S_2 + \sum_{j<k} \mu_2(j, k)\,.$$

Daraus ist ersichtlich, dass die experimentell ermittelten Momente M_n im allgemeinen nicht mit den nach der Waller-vanVleckschen Methode berechneten Momenten S_n übereinstimmen, sondern dass eine u. U. erhebliche Korrektur anzubringen ist, die durch die natürliche und apparative Linienbreite verursacht wird.

4. Ein expliziter Ausdruck für die Intensitäten in Funktion der Resonanzfrequenzen

In diesem Kapitel nehmen wir an, dass der Hamilton-Operator H Anlass zu N Spektrallinien mit den Resonanzfrequenzen $\omega_{jk} = \lambda_j - \lambda_k$ und den Intensitäten A_{jk} gibt, wobei wir der Einfachheit halber die Indizierung ändern und die Resonanzfrequenzen und Intensitäten von 1 bis N durchnumerieren und mit ω_j ($\omega_j > 0$) bzw. A_j ($j = 1, 2, \ldots, N$) bezeichnen. In dieser Bezeichnungsweise lauten dann die Summensätze (3–3)

$$S_n = \sum_{j=1}^{N} \omega_j^n A_j . \tag{4–1}$$

Kennt man die N Momente $S_0, S_1, \ldots, S_{N-1}$, so kann man das Gleichungssystem (4–1) nach den Intensitäten A_j auflösen und man findet[8]):

$$A_j = \frac{\sum_{m=0}^{N-1} (-)^m \sigma_{m,j} \cdot S_{N-m-1}}{\prod_{\substack{k=1 \\ k \neq j}}^{N} (\omega_j - \omega_k)} = \frac{\sum_{m=0}^{N-1} (-)^m \sigma_{m,j} \cdot S_{N-m-1}}{\sum_{\substack{k=1 \\ k \neq j}}^{N} (-)^k \sigma_{k,j} \cdot \omega_j^{N-k-1}}, \tag{4–2}$$

wobei $\sigma_{k,j}$ die k-te elementarsymmetrische Funktion vom Grad k der $(N-1)$ Variablen ω_s ($s = 1, 2, \ldots, N$; $s \neq j$) ist:

$$\sigma_{0,j} = 1 \qquad \sigma_{1,j} = \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq j}}^{N} \omega_k \qquad \sigma_{2,j} = \sum_{\substack{m=1 \\ m \neq j}}^{N} \sum_{\substack{k=m+1 \\ k \neq j}}^{N} \omega_m \omega_k \qquad \ldots .$$
$$\sigma_{N-1,j} = \prod_{\substack{m=1 \\ m \neq j}}^{N} \omega_m . \tag{4–3}$$

Diese explizite Darstellung (4–2) der Intensitäten in Funktion der Frequenzen und der Momente erweist sich für die Diskussion des Verlaufs der Intensitäten in Funktion von Parametern im Hamilton-Operator oftmals als nützlich.

5. Ein algebraisches Eigenwertproblem für das Spektrum

Den geeignetsten Ausgangspunkt für die Berechnung des Spektrums bildet die Differentialgleichung, der $X(t)$ von Gl. (21–5) genügt. Man verifiziert sofort, dass der Operator

$$X(t) = e^{-iHt} P e^{iHt} \tag{51–1}$$

Lösung der Differentialgleichung

$$i dX/dt = [H, X] = HX - XH \tag{51–2}$$

mit der Anfangsbedingung

$$X(0) = P \tag{51–3}$$

ist. Die Fouriertransformation

$$X(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \widehat{X}(\omega)\, e^{-i\omega t}\, d\omega \tag{51–4}$$

algebraisiert die Differentialgleichung (51–2) und ergibt:

$$\omega \widehat{X} = [H, \widehat{X}]\,. \tag{51–5}$$

Wie NAMBU[9]) im Zusammenhang mit Problemen der Feldquantisierung erwähnte, kann eine Relation des Typus von Gl. (51–5) als verallgemeinertes lineares Eigenwertproblem mit dem Eigenwert ω_j und dem Eigenoperator $\widehat{X}_j$ aufgefasst werden. Wie man leicht verifiziert, bestehen zwischen dem ursprünglichen Eigenwertproblem des Operators H,

$$H \Psi_j = \lambda_j \Psi_j\,, \tag{51–6}$$

und dem Eigenwertproblem (51–5) folgende bemerkenswerte Zusammenhänge:

1. Ein Eigenwert von (51–5) ist gleich der Differenz zweier Eigenwerte von (51–6), d. h. jeder experimentell beobachtbaren Resonanzfrequenz entspricht ein Eigenwert von Gl. (51–5).

2. Ist $\widehat{X}_j$ Eigenoperator von (51–5) und Ψ_k Eigenfunktion von (51–6), so ist $\widehat{X}_j \Psi_k$ entweder Null oder wieder Eigenfunktion von (51–6).

3. Ist $\widehat{X}_j$ Eigenoperator von (51–5) mit dem Eigenwert ω_j, so ist $\widehat{X}_j \widehat{X}_k$ wieder Eigenoperator von (51–5) mit dem Eigenwert $\omega_j + \omega_k$.

4. $[H, \widehat{X}^\dagger \widehat{X}] = [H, \widehat{X}\widehat{X}^\dagger] = 0$ bilden eine Kommutatoralgebra von H.

Mit (51–4) und (2–1) ergibt sich für das (für negative Frequenzen als gerade Funktion fortgesetzte) Spektrum $Q(\omega)$:

$$Q(\omega) = \sum_{j,k} A_{jk}\, \delta(\omega - \omega_{jk}) = Sp\,\{\widehat{X}(\omega) \cdot P\}\,, \tag{51–7}$$

wobei $\widehat{X}(\omega)$ die Lösung des Eigenwertproblems (51–5) ist. Diese Gleichungen dürften der geeignete Ausgangspunkt zur Diskussion der algebraischen Struktur des Spektrums sein. Insbesondere wird Gl. (51–5) zusammen mit Gl. (51–7) eine Diskussion der möglichen Entartungen der Resonanzfrequenzen mit gruppentheoretischen Hilfsmitteln erlauben, worauf wir in einer späteren Arbeit zurückkommen werden.

Es sei noch erwähnt, dass man das Eigenwertproblem von NAMBU mit Hilfe der Methode der orthogonalen Operatoren von FANO[10]) auf ein gewöhnliches Eigenwertproblem reduzieren kann. Es sei $\{U_0, U_1, U_2, \ldots\}$ ein vollständiges System hermitescher Operatoren, die bezüglich der Spurbildung orthonormiert seien,

$$Sp\,(U_j U_k) = \delta_{jk}\,. \tag{51–8}$$

Nach FANO kann man jeden hermiteschen Operator O aus der durch die U_j erzeugten Operatorenalgebra nach den Orthogonaloperatoren U_j entwickeln:

$$O = \sum_j Sp\,(OU_j) \cdot U_j\,. \tag{51–9}$$

Entwickelt man die Operatoren H und X nach den U_j

$$H = \sum_j h_j U_j\,, \qquad h_j = Sp\,(HU_j) \tag{51–10}$$

$$X = \sum_j x_j U_j\,, \qquad x_j = Sp\,(XU_j) \tag{51–11}$$

und setzt man in die rechte Seite von Gl. (51–5) die Entwicklung von X ein, so erhält man nach der Multiplikation mit x_k und Spurbildung:

$$\omega x_k = \sum_j x_j \, Sp \, \{[H, U_j] \, U_k\} = \sum_j x_j \, Sp \, \{H \, [U_j, U_k]\} \, . \quad (51\text{-}12)$$

Die Operatoren U_j erzeugen eine Liesche Algebra mit den Strukturkonstanten c_{jk}^{p}

$$[U_j, U_k] = \sum_p c_{jk}^{p} \, U_p \, . \quad (51\text{–}13)$$

Damit reduziert sich Gl. (51–12) zu

$$\omega x_k = \sum_j x_j \sum_p c_{jk}^{p} \, h_p \, . \quad (51\text{–}14)$$

Mit der schiefsymmetrischen Matrix T

$$T = (T_{jk}) \, , \qquad T_{jk} = \sum_p c_{jk}^{p} \, h_p \quad (51\text{–}15)$$

erhält man somit aus dem Nambuschen Eigenwertproblem ein konventionelles Matrixeigenwertproblem

$$T \, (x) = \omega \, (x) \, , \qquad (\tilde{x}) = (x_1, x_2, \ldots) \quad (51\text{–}16)$$

mit dem Eigenwert ω und den Eigenvektoren (x). Somit geben die Eigenwerte des Matrix-Eigenwertproblems (51–16) direkt die Resonanzfrequenzen, während die Eigenvektoren (x) in einfacher Weise mit den Intensitäten zusammenhängen. Beispielsweise ist in der Kernresonanzspektroskopie mit isotropen Substanzen der Dipolmomentoperator P gegeben durch

$$P = \sum_{j=1}^{\varkappa} \gamma_k \, \boldsymbol{I}_{k_x} \, , \quad (51\text{–}17)$$

wobei γ_k das gyromagnetische Verhältnis, $\boldsymbol{I}_k$ der Spinoperator des k-ten Kernes ist (Zahl der Kerne $= \varkappa$). In diesem Falle darf man für die ersten $\varkappa + 1$-Operatoren U_j folgende Wahl treffen:

$$\begin{aligned} U_0 &= (Sp \, E)^{-1/2} \cdot E \; (E = \text{Einheitsoperator}) \\ U_j &= 2 \, I_{jx} \; (j = 1, 2, \ldots,) \, . \end{aligned} \quad (51\text{–}18)$$

Ohne Einschränkung der Allgemeinheit dürfen wir uns auf Teilchen mit dem Spin 1/2 beschränken, womit dann die Orthonormierungsbedingung (51–8) erfüllt ist. Damit erhält man für das Spektrum $Q \, (\omega)$ (Gl. 51–8):

$$Q \, (\omega) = Sp \, X \, (\omega) \, P = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{\varkappa} \gamma_j x_j = \frac{1}{2} \, (\tilde{\gamma}) \, (x) \quad (51\text{–}19)$$

$$\text{mit } (\tilde{\gamma}) = (\gamma_1, \gamma_2, \ldots, \gamma_k, 0, 0, \ldots) \, .$$

Fällt ω mit einem Eigenwert von Gl. (51–16) zusammen, so ist in (51-19) für (x) der entsprechende Eigenvektor einzusetzen, ist dagegen ω verschieden von einem Eigenwert, so hat man für (x) den Nullvektor einzusetzen.

Es sei noch darauf aufmerksam gemacht, dass sich die Relation (51–16) kaum für eine explizite Rechnung eignen dürfte. Denn falls der Hamilton-Operator H eine $(n \times n)$-Matrix ist, so kann im allgemeinsten Fall die Matrix T die Dimension von bis zu $(n^2 \times n^2)$ haben.

6. Eine Approximationsmethode zur Berechnung der Korrelationsfunktion

61. *Allgemeines*

Wie in Kap. 3 gezeigt wurde, führt die Entwicklung der Korrelationsfunktion $K(t)$ nach Potenzen von t zu der Waller-vanVleckschen Momentenmethode und erlaubt nur in den wenigsten Fällen eine vollständige Berechnung des Spektrums. Da eine strenge Berechnung der Korrelationsfunktion nach Gl. (21–4) und (21–5) nur bei sehr einfachen Hamilton-Operatoren möglich zu sein scheint, ist es im allgemeinen notwendig, zu einem Approximationsverfahren überzugehen. Wie üblich, spalten wir daher den Hamilton-Operator H in einen relativ einfachen Operator H_0 und einen Störoperator H_1 auf:

$$H = H_0 + \varepsilon H_1 . \tag{61–1}$$

Eine Entwicklung von $\exp(iH_0t + i\varepsilon H_1t)$ in Gl. (21–5) nach Potenzen von ε ist immer gleichzeitig eine Entwicklung nach Potenzen von t und bietet gegenüber einer direkten Potenzreihenentwicklung von $K(t)$ (Methode von WALLER und VAN VLECK) kaum Vorteile. Um eine geeignete Entwicklung nach Potenzen von ε zu erhalten, ist es notwendig, auf die durch den Operator H_0 erzeugte Wechselwirkungsdarstellung überzugehen. Im folgenden werden wir zeigen, dass die dabei entstehende Operatorendifferentialgleichung durch eine geeignete unitäre Transformation S gelöst werden kann, wobei dann in der Korrelationsfunktion die Frequenzen und Intensitäten nach Potenzen von ε entwickelt sind.

62. *Skizzierung der Näherungsmethode*

Die im folgenden beschriebene Approximationsmethode wurde durch die Arbeiten von H. S. GREEN[11]) und S. TANI[12]) nahegelegt. Von dem Hamilton-Operator H spalten wir den Störoperator H_1 ab,

$$H = H_0 + \varepsilon H_1 , \tag{62–1}$$

und gehen zu der durch H_0 erzeugten Wechselwirkungsdarstellung über. Mit den Bezeichnungen

$$\overline{H}_1(t) = \exp(iH_0t)\, H_1 \exp(-iH_0t) \tag{62–2}$$

$$\overline{X}(t) = \exp(iH_0t)\, X(t) \exp(-iH_0t) \tag{62–3}$$

reduziert sich die Differentialgleichung für $X(t)$

$$i\, dX/dt = [H, X] , \quad X(0) = P \tag{62–4}$$

auf folgende, H_0 nicht mehr enthaltende Differentialgleichung:

$$i\, d\overline{X}/dt = \varepsilon [\overline{H}_1, \overline{X}] , \quad \overline{X}(0) = P , \tag{62–5}$$

Wegen der Invarianz der Spur gegen unitäre Transformationen gilt dann

$$K(t) = Sp\{\bar{X}(t) \cdot \bar{P}(t)\}, \tag{62-6}$$

wobei

$$\bar{P}(t) = \exp(iH_0 t)\, P \exp(-iH_0 t). \tag{62-7}$$

Zur Lösung der Differentialgleichung (62 5) führen wir eine zeitabhängige unitäre Transformation $S(t)$ aus, mit

$$S^\dagger S = SS^\dagger = E, \quad S(0) = S_0, \tag{62-8}$$

wobei speziell darauf hingewiesen sei, dass wir $S(t-0)$ nicht gleich dem Einheitsoperator setzen. Mit

$$Y = S^\dagger \bar{X} S \tag{62-9}$$

transformiert sich die Differentialgleichung (62 5) auf die folgende

$$i\, dY/dt = [W, Y], \quad Y(0) = S_0^\dagger P S_0, \tag{62-10}$$

wobei

$$W = \varepsilon S^\dagger \dot{H}_1 S - i S^\dagger \cdot \dot{S}. \tag{62-11}$$

Wie wir in Kap. 64 zeigen werden, kann man durch den Ansatz

$$S(t) = \exp\{-iG(t)\}, \; G = G^\dagger, \; G(0) = G_0 \tag{62-12}$$

und mit Gl. (62-11) erreichen, dass einerseits W mit H_0 vertauschbar und zeitlich konstant ist und dass $G(t)$ eine trigonometrische Summe ohne konstanten Term ist. Daher kann man Gl. (62 10) sofort integrieren und erhält:

$$Y(t) = \exp(-iWt) \exp(iG_0)\, P \exp(-iG_0) \exp(iWt). \tag{62-13}$$

Damit erhält man mit Gl. (62-6) und (62 9) für die Korrelationsfunktion $K(t)$

$$K(t) = Sp\{e^{-iG} e^{-iWt} e^{+iG_0} P e^{-iG_0} e^{iWt} e^{iG} P\}. \tag{62-14}$$

Bezeichnen wir mit

$$\hat{G} = \exp(-iH_0 t)\, G(t) \exp(iH_0 t) \tag{62-15}$$

und transformieren wir mit $\exp(-iH_0 t)$ von der Wechselwirkungsdarstellung wieder zur Heisenbergdarstellung zurück, so erhalten wir wegen $[H_0, W] = 0$:

$$K(t) = Sp\{e^{-i(H_0+W)t} e^{iG_0} P e^{-iG_0} e^{i(H_0+W)t} \cdot e^{i\hat{G}} P e^{-i\hat{G}}\}. \tag{62-16}$$

In Kap. 64 werden wir beweisen (vgl. Gl. 64–16, 64–17), dass $G_0 = \widehat{G}$ ist. Entwickelt man den Operator G nach Potenzen von ε

$$\widehat{G} = \sum_{n=1}^{\infty} \varepsilon^n \widehat{G}_n , \tag{62–17}$$

so findet man mit Gl. (22–11)

$$\exp(i\widehat{G})\, P \exp(-i\widehat{G}) = P - i\,\varepsilon\,[P, \widehat{G}_1] - \varepsilon^2 \left\{ i\,[P, \widehat{G}_2] + \frac{1}{2}\left[\,[P, \widehat{G}_1], \widehat{G}_1\right] \right\} + 0\,(\varepsilon^3) . \tag{62–18}$$

Schreiben wir

$$\tilde{R} = \exp(iG)\, P \exp(-iG) = \sum_{n=0}^{\infty} \varepsilon^n R_n \tag{62–19}$$

$$R_0 = P \tag{62–20}$$

$$R_1 = -i\,[P, \widehat{G}_1] \tag{62–21}$$

$$R_2 = -i\,[P, \widehat{G}_2] - \frac{1}{2}\left[[P, \widehat{G}_1], \widehat{G}_1\right] \tag{62–22}$$

$$\tilde{R}_n(t) = \exp\{-i\,(H_0 + W)\,t\}\, R_n \exp\{i\,(H_0 + W)\,t\} \tag{62–23}$$

so lautet die Korrelationsfunktion $K(t)$ gemäss Gl. (62–16):

$$K(t) = Sp\{\tilde{R}(t)\, R\} \tag{62–24}$$

oder entwickelt nach Potenzen von ε

$$K(t) = K_0 + \varepsilon K_1 + \varepsilon^2 K_2 + \ldots \tag{62–25}$$

$$K_0 = Sp\{\tilde{R}_0 R_0\} = Sp\{\tilde{P} P\} \tag{62–26}$$

$$K_1 = 2\, Sp\{\tilde{R}_0 R_1\} \tag{62–27}$$

$$K_2 = 2\, Sp\{\tilde{R}_0 R_2\} + Sp\{\tilde{R}_1 R_1\} , \tag{62–28}$$

was die gesuchte Entwicklung darstellt.

63. *Die Struktur des Störoperators $\overline{H}_1$ in der Wechselwirkungsdarstellung*

Wie man sofort sieht, hat $\overline{H}_1(t)$ von Gl. (62–2) immer folgende allgemeine Form

$$H_1(t) = \exp(i H_0 t)\, H_1 \exp(-i H_0 t) = C + \sum_{n=1}^{N} A_n \cos \nu_n t + \sum_{n=1}^{N} B_n \sin \nu_n t , \tag{63–1}$$

wobei A_n, B_n und C konstante Operatoren sind. Ohne Einschränkung der Allgemeinheit darf man natürlich voraussetzen, dass alle ν_n voneinander verschieden und positiv sind:

$$\nu_n \neq \nu_m \text{ für } n \neq m , \qquad \nu_n > 0 . \tag{63–2}$$

Aus der Gleichung (63–1) ist zu entnehmen, dass C mit H_0 vertauschbar ist,

$$[C, H_0] = 0\,, \tag{63-3}$$

und dass die Operatoren A_n, B_n in der Eigenbasis von H_0 keine Diagonalelemente aufweisen. Setzt man in (63–1) $t = 0$, so folgt folgende Zerlegung von H_1

$$H_1 = C + \sum_n A_n\,, \tag{63-4}$$

wobei gilt:

$$\bar{A}_n = \exp(i H_0 t)\, A_n \exp(-i H_0 t) = A_n \cos \nu_n t + B_n \sin \nu_n t \tag{63-5}$$

$$A_n(0) = A_n\,.$$

Durch ein- bzw. zweimalige Differentiation dieser Gleichung nach t folgt für $t = 0$

$$\nu_n B_n = \quad i\,[H_0, A_n] \tag{63-6}$$

$$\nu_n A_n = -\,i\,[H_0, B_n]\,. \tag{63-7}$$

Mit Gl. (22–11) folgt damit

$$\bar{B}_n(t) = \exp(i H_0 t)\, B_n \exp(-i H_0 t) = B_n \cos \nu_n t - A_n \sin \nu_n t \tag{63-8}$$

$$\bar{B}_n(0) = B_n\,.$$

Die durch die Operatoren von Gl. (63–1) erzeugte Liesche Algebra wird somit z. B. von den Operatoren H_0, C, A_1, A_2, ..., A_N erzeugt und umfasst die Operatoren H_0, C, A_n, B_m, $[A_n, A_m]$, $[A_n, B_m]$, $[B_n, B_m]$ usw. $(n, m = 1, 2, \ldots, N)$. Statt den Operatoren A_n, B_m, $[A_n, A_m]$, $[B_n, B_m]$ führt man bequemer folgende Linearkombinationen ein:

$$2 A^{+}_{nm} = \quad [A_n, B_m] + [B_n, A_m] \tag{63-9}$$

$$2 A^{-}_{nm} = \quad [A_n, B_m] - [B_n, A_m] \tag{63-10}$$

$$2 B^{+}_{nm} = -\,[A_n, A_m] + [B_n, B_m] \tag{63-11}$$

$$2 B^{-}_{nm} = \quad [A_n, A_m] + [B_n, B_m]\,. \tag{63-12}$$

Damit folgt mit Gl. (63–5) und (63–8) in genauer Analogie zu diesen Gleichungen:

$$\bar{A}^{\pm}_{nm}(t) = \exp(i H_0 t)\, A^{\pm}_{nm} \exp(-i H_0 t)$$
$$= A^{\pm}_{nm} \cos(\nu_n \pm \nu_m)\, t + B^{\pm}_{nm} \sin(\nu_n \pm \nu_m)\, t \tag{63-13}$$

$$B^{\pm}_{nm}(t) = \exp(i H_0 t)\, B^{+}_{nm} \exp(-i H_0 t)$$
$$= B^{\pm}_{nm} \cos(\nu_n \pm \nu_m)\, t - A^{\pm}_{nm} \sin(\nu_n \pm \nu_m)\, t\,. \tag{63-14}$$

Die zu Gl. (63 6) und (63 7) analogen Vertauschungsrelationen lauten:

$$(\nu_n \pm \nu_m)\, B^{\pm}_{nm} = \quad i\,[H_0, A^{\pm}_{nm}] \tag{63–15}$$

$$(\nu_n \pm \nu_m)\, A^{\pm}_{nm} = -\, i\,[H_0, B^{\pm}_{nm}]\,. \tag{63–16}$$

Ganz analoge Relationen gelten für die höheren Kommutatoren. Ist $f(t)$ eine trigonometrische Summe ohne konstanten Term, so sei im folgenden in dem Integral

$$\int^{t} f(x)\, dx$$

die Integrationskonstante immer so bestimmt, dass das Integral wieder eine trigonometrische Summe *ohne* konstanten Term ist. Mit der durch Differentiation von (63–5) folgenden Relation

$$i\,[H_0, \bar{A}_n] = -\,\nu_n\,(A_n \sin \nu_n t - B_n \cos \nu_n t) \tag{63–17}$$

ergibt sich daher mit Gl. (63–5) und (63–6) für das im erwähnten Sinne verstandene Integral von $\bar{A}_n$:

$$\int^{t} \bar{A}_n(x)\, dx = -\,(i/\nu_n^2)\,[H_0, \bar{A}_n(t)] = -\,(1/\nu_n)\,\bar{B}_n(t)\,. \tag{63–18}$$

Genau analog findet man:

$$\int^{t} \bar{B}_n(x)\, dx = \quad (1/\nu_n)\,\bar{A}_n(t) \tag{63–19}$$

$$\int^{t} \bar{A}^{\pm}_{nm}(x)\, dx = -\,(\nu_n \pm \nu_m)^{-1}\,\bar{B}^{\pm}_{nm}(t) \tag{63–20}$$

$$\int^{t} \bar{B}^{\pm}_{nm}(x)\, dx = \quad (\nu_n \pm \nu_m)^{-1}\,\bar{A}^{\pm}_{nm}(t)\,. \tag{63–21}$$

Aus diesen Relationen ist ersichtlich, dass die Operatoren (63-18) bis (63-21) und die analogen höheren integrierten Operatoren in der Eigenbasis von H_0 ebenso wie die Operatoren A_n, B_n, $A^{\pm}_{nm}$, $B^{\pm}_{nm}$ usw. *keine* Diagonalterme aufweisen und zudem (per definitionem) trigonometrische Summen ohne konstanten Term sind. Transformiert man diese Operatoren von der Wechselwirkungsdarstellung zur Heisenberg-Darstellung zurück, so resultieren alles explizite zeitunabhängige Operatoren. Es sei $\mathfrak{R}$ der aus den Operatoren C, $\bar{A}_n$, B_m $(n, m = 1, \ldots, N)$ erzeugte Kommutatorring, in dem die Kommutatorbildung, die Multiplikation mit einem Skalar und die im erläuterten Sinne ausgeführte Integration über Operatoren, die keine konstante Terme enthalten, zulässige Operationen sind. Sei weiter $\mathfrak{L}$ die durch die Operatoren H_0, C, A_n $(n = 1, \ldots, N)$ erzeugte Liesche Algebra. Die oben abgeleiteten Relationen bedeuten dann einfach, *dass der Ring* $\mathfrak{R}$ *isomorph der Lieschen Algebra* $\mathfrak{L}$ *ist*. Damit folgt, dass sämtliche Operatoren aus $\mathfrak{R}$, die eine trigonometrische Summe

ohne konstanten Term darstellen, in der Eigenbasis von H_0 *keine* Diagonalterme aufweisen und dass sämtliche zeitlich konstante Operatoren aus $\mathfrak{L}$ mit H_0 vertauschbar sind*).

64. *Bestimmung der unitären Transformation S*

Aus

$$S(t) = \exp(-iG(t)), \; G(0) = G_0 \tag{64-1}$$

erhält man durch Anwendung der bekannten Differentiationsformeln[13]) für einen zeitabhängigen Operator (vgl. Gl. 22-11 und 22-12)

$$S^\dagger \dot{S} = -i \int_0^1 e^{i\alpha G} \dot{G} e^{-i\alpha G} \, d\alpha = -i \sum_{s=0}^{\infty} \frac{(-i)^s}{(s+1)!} C_s[\dot{G}, G] \tag{64-2}$$

und somit mit Gl. (22-11) und (62-11)

$$W = \sum_{s=0}^{\infty} \frac{(-i)^s}{s!} C_s[\varepsilon \bar{H}_1 - \dot{G}/(s+1), G] \, . \tag{64-3}$$

Aus dieser Gleichung bestimmen wir nun W *und* G so, dass W mit H_0 vertauschbar und zeitunabhängig ist, und dass G in der Eigenbasis von H_0 keine Diagonalelemente enthält und eine trigonometrische Summe ohne konstanten Term ist. Dass diese Bedingungen erfüllbar sind, wurde in Kap. 63 gezeigt, falls man bei Integrationen die Integrationskonstante so bestimmt, dass das Integral einer trigonometrischen Summe ohne konstanten Term wiederum eine solche ergibt.

Durch Potenzreihenentwicklung nach ε

$$W = \sum \varepsilon^n W_n \, , \quad G = \sum \varepsilon^n G_n \tag{64-4}$$

kann man die Lösung von Gl. (64-3) durch Koeffizientenvergleich rekursiv erhalten:

$$W_1 + \dot{G}_1 = \bar{H}_1 \tag{64-5}$$

$$W_2 + \dot{G}_2 = -i[\bar{H}_1 - \dot{G}_1/2, G_1] = -i[W_1 + \dot{G}_1/2, G_1] \tag{64-6}$$

. . .

*) Für die Gültigkeit dieser Beziehungen ist es notwendig, dass die Integration in $\mathfrak{R}$ in der angegebenen Weise durchgeführt wird. Die Integration

$$\int^t f(x) \, dx$$

darf beispielsweise nicht als $\int_0^t f(x) \, dx$ definiert werden (was zu der an sich angenehmen Relation $S(0) = E$ Anlass gäbe). Dieser Sachverhalt wurde von H. S. GREEN[11]) nicht beachtet, und er erhält so teilweise unrichtige Resultate.

Die Ermittlung der höheren Näherungen macht keinerlei Schwierigkeiten. Mit der Darstellung von $\bar{H}_1(t)$ nach Gl. (63–1) erhält man mit Gl. (63–3) und (63–18):

$$W_1 = C \tag{64–7}$$

$$G_1 = \int^t A_n(x)\,dx = -\sum (1/\nu_n)\,\bar{B}_n(t)\,. \tag{64–8}$$

Zur Berechnung der zweiten Näherung bestimmen wir mit Gl. (64–8), (63–9) und (63–10) zunächst den folgenden Kommutator:

$$[\dot{G}_1, G_1] = -\sum_{n,m} (1/\nu_m)\,[\bar{A}_n, \bar{B}_m] = -\sum_{n,m} (1/\nu_m)\,(\bar{A}^+_{nm} + \bar{A}^-_{nm})\,. \tag{64–9}$$

Von den Operatoren $\bar{A}^-_{nm}$ ist wegen (63–2) nach (63–13) lediglich $\bar{A}^-_{nn}$ ein konstanter Operator, so dass wegen $[W_j, H_0] = 0$ aus (64–6) für W_2 folgt, dass

$$W_2 = \frac{i}{2}\sum_n (1/\nu_n)\,\bar{A}^-_{nn} = \frac{i}{2}\sum_n (1/\nu_n)\,[\bar{A}_n, \bar{B}_n]\,. \tag{64–10}$$

Wegen $\bar{A}^+_{nn} = 0$ ergibt sich weiter aus (64–6), (64–8) und (64–9):

$$G_2 = i\int^t \sum_n (1/\nu_n)\,[W, B_n(x)]\,dx + \frac{i}{2}\int^t \sum_{n\neq m} (1/\nu_m)\,\{\bar{A}^-_{nm}(x) + \bar{A}^-_{nm}(x)\}\,dx$$

und damit mit Gl. (63–19) und (63–20)

$$G_2 = i\sum_n \nu_n^{-2}\,\dot{A}_n(t) - \frac{i}{2}\sum_{n\neq m}\sum_{+,-} \nu_m^{-1}\,(\nu_n \pm \nu_m)^{-1}\,\bar{B}^{\pm}_{nm}\,. \tag{64–11}$$

Transformieren wir gemäss Gl. (62–15) zur Heisenberg-Darstellung zurück, so erhalten wir mit den obigen Relationen:

$$W_1 = C \tag{64–12}$$

$$W_2 = \frac{i}{2}\sum_n (1/\nu_n)\,[A_n, B_n] \tag{64–13}$$

$$\hat{G}_1 = -\sum_n (1/\nu_n)\,B_n \tag{64–14}$$

$$\hat{G}_2 = i\sum_n \nu_n^{-2}\,A_n - \frac{i}{2}\sum_{n\neq m}\sum_{+,-} \nu_m^{-1}\,(\nu_n \pm \nu_m)^{-1}\,B^{\pm}_{nm}\,, \tag{64–15}$$

während man für $G_{0n} = G_n(0)$ mit den Gl. (63–5), (63–8), (63–13) und (63–14) findet:

$$G_{01} = G_1 \tag{64–16}$$

$$G_{02} = G_2\,. \tag{64–17}$$

65. *Zusammenfassung der Näherungsmethode*

Unter Benützung der in Kap. 63 und 64 abgeleiteten Resultate kann man die Entwicklung (62-25) bis (62–28) wie folgt zusammenfassen:

a) Vom Hamilton-Operator H wird ein Stör-Operator H_1 abgespalten

$$H = H_0 + \varepsilon H_1 .$$

b) Gemäss der Relation

$$\exp(i H_0 t)\, H_1 \exp(-i H_0 t) = C + \sum_n A_n \cos \nu_n t + \sum_n B_n \sin \nu_n t$$

werden die zeitlich konstanten Operatoren A_n, B_n und C sowie die Frequenzen ν_n berechnet. Diese Zerlegung ist eindeutig, wenn man beachtet, dass $\nu_n \neq \nu_m$ für $n \neq m$ und $\nu_n > 0$.

c) Die Korrelationsfunktion $K(t)$ von Gl. (21–4) kann nach Potenzen von ε entwickelt werden

$$K(t) = K_0(t) + \varepsilon K_1(t) + \varepsilon^2 K_2(t) + \dots ,$$

wobei die Näherungen durch folgende Ausdrücke zu berechnen sind:

$$K_0 = Sp\{\tilde{P} P\}$$

$$K_1 = \frac{i}{2} \sum_n (1/\nu_n)\; Sp\{\tilde{P}\,[P, B_n]\}$$

$$K_2 = 2 \sum_n (1/\nu_n)^2\, Sp\{\tilde{P}\,[P, A_n]\}$$

$$- \frac{1}{2} \sum_{n \mp m} \sum_{-,-} \nu_n^{-1} (\nu_n \pm \nu_m)^{-1}\, Sp\left\{\tilde{P}\left[P\,[B_n, B_m] \mp [A_n, A_m]\right]\right\}$$

$$- \sum_{n,m} (1/\nu_n \nu_m) \left(Sp\left\{\tilde{P}\left[[P, B_n], B_m\right]\right\} + Sp\left\{[P, B_n]\cdot[P, B_m]\right\}\right) .$$

Die durch ein $\sim$-Zeichen angedeutete Transformation ist definiert durch:

$$\tilde{Z} = \exp(-i (H_0 + W) t)\; Z \exp(i (H_0 + W) t) \qquad (Z = P \text{ oder } B_n) .$$

Der Operator W ist mit H_0 vertauschbar und bis und mit zur zweiten Näherung gegeben durch

$$W = C + \frac{i}{2} \sum_n (1/\nu_n)\, [A_n, B_n] .$$

Bei dieser Näherungsmethode sind sowohl die Intensitäten als auch die Frequenzen nach Potenzen von ε entwickelt. Die Resultate sind somit äquivalent mit denjenigen, die man nach der konventionellen Methode durch störungstheoretische Behandlung des Eigenwertproblems des

Hamilton-Operators H erhalten kann, doch wird der Arbeitsaufwand für eine explizite Rechnung nach der hier beschriebenen Methode bedeutend geringer sein.

Wir danken dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der Wissenschaften (Projekt Nr. 721) und der Firma *Hoffmann-La Roche AG*, Basel, für die Unterstützung dieser Arbeit.

Literaturverzeichnis

[1]) W. Heitler, Quantum Theory of Radiation (Oxford 1954), 3.Aufl., S. 136.
[2]) Helv. Physica Acta, in Vorbereitung.
[3]) Helv. Chimica Acta, in Vorbereitung.
[4]) A. Erdélyi, Tables of Integral Transforms (New York 1954), Vol. II, S. 243ff.
[5]) W. Pauli, Handbuch der Physik, 2. Aufl., *24/I*, S. 182.
[6]) I. Waller, Z. f. Physik *79*, 370 (1932).
[7]) J. H. Van Vleck, Phys. Rev. *74*, 1168 (1948).
[8]) H. Primas und Hs. H. Günthard, Helv. Chim. Acta *38*, 1254 (1955).
[9]) Y. Nambu, Progr. Theor. Physics *4*, 331 (1949).
[10]) U. Fano, Rev. Mod. Physics *29*, 74 (1957).
[11]) H. S. Green, Proc. Roy. Soc. (London) A *197*, 73 (1949).
[12]) S. Tani, Progr. Theor. Physics *11*, 190 (1954).
[13]) W. E. Roth, Trans. Amer. Math. Soc. *39*, 483 (1936).
[14]) R. Kubo und K. Tomita, J. Phys. Soc. Japan. *9*, 888 (1954); R. Kubo, J. Phys. Soc. Japan, **12**, 570 (1957); R. Kubo, Nuovo Cim. Suppl. zu X *6*, 1063 (1957).

© 1958 by Schweizerische Physikalische Gesellschaft
Société Suisse de Physique. – Società Fisica Svizzera
Nachdruck verboten – Tous droits réservés – Printed in Switzerland

Coulomb-Anregung einiger deformierter *u–g*-Kerne

von **M. Martin, P. Marmier** und **J. de Boer**
Physikalisches Institut der Eidg. Technischen Hochschule, Zürich

(18. II. 1958)

Summary: Electric excitation of the two first rotational levels of Au^{197}, Ta^{181}, Lu^{175}, Tm^{169}, Ho^{165}, Tb^{159}, $Eu^{153, 151}$ and $Ag^{109, 107}$ has been studied using protons of 4,05 MeV. Spins, transition probabilities, and multipolarities, as well as moments of inertia, deformation parameters, and gyromagnetic factors were deduced from yields and angular distributions of the gamma-rays.

I. Ergebnisse der Theorie der Coulomb-Anregung

I.1. *Einleitung*

Seit der Entdeckung der elektrischen Anregung von Rotationszuständen am Tantal im Jahre 1952 sind schon eine grosse Zahl von Arbeiten über diesen Gegenstand erschienen. Die Untersuchung von deformierten Kernen durch die Anregung von kollektiven Bewegungen des Kerns (Rotationen oder Vibrationen) mit dem elektrischen Felde schneller, geladener Teilchen hat sich als eine nützliche und wertvolle Methode erwiesen.

Während die aus Intensitätsmessungen in Gammaspektren erhältlichen Informationen schon für eine grosse Zahl stabiler Kerne vorliegen, sind Gammawinkelverteilungsmessungen besonders für Kerne mit ungerader Nukleonenzahl erst für einige wenige Kerne durchgeführt worden. Abgesehen davon, dass auch durch die $E2$-Übergänge in solchen Kernen die Theorie der Coulombanregung geprüft werden kann, lassen sich für die gemischten $M1+E2$-Übergänge der Kaskade eines Rotationsspektrums zusätzliche Informationen für die Systematik deformierter Kerne gewinnen:

1. Die für ein Rotationsspektrum charakteristische Spinzuordnung kann bestimmt werden.

2. Die aus der Messung der Konversionselektronen und Verzweigungsverhältnisse ermittelten $E2/M1$-Mischungsverhältnisse lassen sich verifizieren.

3. Das Vorzeichen der Mischungsverhältnisse kann ermittelt werden und gestattet die Ausschliessung des einen Lösungspaares der aus den

Gammaübergangswahrscheinlichkeiten berechneten gyromagnetischen Faktoren.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Vervollständigung des empirischen Materials hauptsächlich durch Winkelverteilungsmessungen für einige deformierte u–g-Kerne und ein Vergleich der Resultate mit dem kollektiven Modell der Kerne.

I.2. *Elektrische Anregung von Rotationszuständen*

Die Theorie der Coulomb-Anregung ist von ALDER, BOHR, HUUS, MOTTELSON und WINTHER[1]) zusammenfassend dargestellt worden. Es sollen hier nur die für die Auswertung der Messungen wichtigsten Ergebnisse zusammengestellt werden.

Da der Anregungsprozess durch eine elektromagnetische Wechselwirkung zustandekommt, kann für die reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten die Theorie der Multipolstrahlungen benützt werden. Man verwendet für die Beschreibung des einer elektrischen Anregung nachfol-

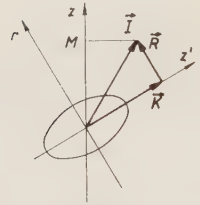


Fig. 1

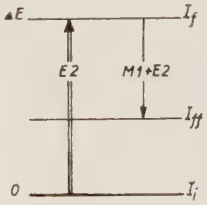


Fig. 2



Fig. 3

Fig. 1. Kopplungsschema für deformierte Kerne.
Fig. 2. Niveauschema für Anregungs- und Zerfallsprozesse.
Fig. 3. Hypothetische γ–γ-Kaskade.

genden Gammazerfalls (Fig. 2) zweckmässig eine hypothetische γ–γ'-Kaskade (Fig. 3) und interpretiert den Anregungsprozess als Multipolübergang der Ordnung λ. Wenn I_i, I_f und I_{ff} die Spins im Grund-, Anregungs- und Endzustand bezeichnen, so besteht zwischen den reduzierten Anregungs- und Zerfallswahrscheinlichkeiten der Zusammenhang:

$$B(\lambda)_d = B(\lambda, I_f \rightarrow I_i) = \frac{2I_i+1}{2I_f+1} B(\lambda)_{ex} = \frac{2I_i+1}{2I_f+1} B(\lambda, I_i \rightarrow I_f).^*) \qquad (1)$$

a) *Das Rotationsspektrum*

Im Falle der Anregung von Rotationsniveaus in deformierten Kernen (Fig. 1) wird eine Rotation von Kernmaterie um eine Achse r senkrecht

*) Der Index «ex» bedeutet Anregung (excitation) und «d» Zerfall (decay).

zur Symmetrieachse z' bewirkt ohne Beeinflussung des inneren, durch den Spin $\vec{K}$ charakterisierten Kernzustandes. Die Rotationsniveaus sind durch einen Drehimpuls $\vec{R}$ gekennzeichnet, der sich vektoriell mit dem inneren Drehimpuls $\vec{K}$ zum Gesamtspin $\vec{I}$ addiert.

Die Anregung von Rotationsniveaus unterliegt wie in der Theorie der Multipolstrahlungen folgenden Auswahlregeln:

$$|I_i - I_f| \leqq \lambda \leqq I_i + I_f$$

$$\pi_i \pi_f = \left\{ \begin{array}{ll} (-1)^\lambda & \text{für } E\lambda \text{ elektrische} \\ (-1)^{\lambda-1} & \text{für } M\lambda \text{ magnetische} \end{array} \right\} \text{Multipolanregung} \qquad (2)$$

Solange nur elektrische Quadrupolanregungen ($E2$) in Frage kommen, wie dies empirisch für die meisten untersuchten Kerne festgestellt wurde, werden hauptsächlich die zwei untersten Niveaus angeregt. Im Falle von g-g-Kernen mit dem inneren Spin $K = 0$ sind aus Symmetriegründen nur die Rotationszustände vom Spin 0, 2, 4, ... möglich, so dass nur ein Rotationsniveau vom Spin 2 beobachtet werden kann. Bei u-g-Kernen hat ein Rotationsband die Drehimpulse $I = K, K+1, K+2, \ldots$ Durch $E2$-Anregung bekommt man deshalb zwei Rotationsniveaus gleichbleibender Parität, wie dies in Figur 7 schematisch dargestellt ist. Bezeichnet man den Spin im Grundzustand mit $K = I_0$, so haben die beiden angeregten Rotationsniveaus die Drehimpulse $I_0 + 1$ und $I_0 + 2$. Nach dem kollektiven Modell von BOHR und MOTTELSON[2]) können die inneren Nukleonenbewegungen von der kollektiven Rotationsbewegung separiert werden, weshalb man für die Energie eines Rotationszustandes vom Spin I zwei Terme bekommt:

$$E_I = E_0 + \frac{\hbar^2}{2\Im}\left[I(I+1) + a(-1)^{I+\frac{1}{2}}(I+\tfrac{1}{2})\,\delta_{K,\frac{1}{2}}\right] \qquad (3)$$

Hierin bedeuten $\Im$ das effektive Trägheitsmoment in bezug auf die Achse r und der Parameter a eine Korrektur im Falle von Rotationsbändern mit $I_0 = K = \frac{1}{2}$. Aus den gemessenen Anregungsenergien ΔE_1 und ΔE_2 beider Niveaus können das Trägheitsmoment $\Im$ und der Entkopplungsparameter a ermittelt werden:

$$\frac{\hbar^2}{2\Im} = \frac{\Delta E_I}{I(I+1) - I_0(I_0+1)} \qquad I_0 \neq \tfrac{1}{2} \qquad (4)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \dfrac{\hbar^2}{2\Im} = \dfrac{\Delta E_1}{3(1+a)} = \dfrac{\Delta E_2}{2(4-a)} \\ \\ a = \dfrac{8\Delta E_1 - 3\Delta E_2}{2\Delta E_1 + 3\Delta E_2} \end{array} \right. \qquad I_0 = \tfrac{1}{2} \qquad \begin{array}{l} (5) \\ \\ (6) \end{array}$$

$$\Im = \frac{350}{\left(\dfrac{\hbar^2}{2\Im}\right)_{\mathrm{keV}}} \cdot 10^{-48}\ [\mathrm{g\,cm^2}]\,. \qquad (7)$$

Die Beurteilung, ob man es mit einem Rotationsspektrum zu tun hat, kann durch Vergleich des gemessenen Verhältnisses der Anregungsenergien mit den theoretischen Werten (Tabelle I) erfolgen:

$$\frac{\Delta E_2}{\Delta E_1} = \frac{(I_0+2)(I_0+3)-I_0(I_0+1)}{(I_0+1)(I_0+2)-I_0(I_0+1)} . \tag{8}$$

Tabelle I

Verhältnisse der Anregungsenergien für Rotationsniveau im kollektiven Model

I_0	0	1/2	3/2	5/2	7/2	9/2
$\Delta E_2/\Delta E_1$	3,00	2,67	2,40	2,29	2,22	2,18

b) *Wirkungsquerschnitte für elektrische Anregung*

In der klassischen Theorie des Anregungsprozesses kann die Hyperbelbahn eines am Targetkern gestreuten Ions zugrunde gelegt werden, da die Bahn durch die Abgabe der im Verhältnis zur kinetischen Energie kleinen Anregungsenergien wenig gestört wird. Für den totalen Wirkungsquerschnitt einer elektrischen Multipolanregung ergibt die quantenmechanische Theorie:

$$\sigma(E\lambda) = \left(\frac{Z_1 e}{\hbar v_i}\right)^2 a^{-2\lambda+2} B(E\lambda) f_{E\lambda}(\eta_i,\xi) . \tag{9}$$

Hierin bedeuten:

$a = \frac{Z_1 e \cdot Z_2 e}{m_0 v_i v_f}$ halber (symmetrisierter) minimaler Abstand bei Zentralstoss

$Z_1 e$, $Z_2 e$ Ladungen von Ion und Targetkern

$m_0 = \frac{m_1 m_2}{m_1+m_2}$ reduzierte Masse

$\frac{m_1}{2} v_i^2 = E_0$ Ionenenergie vor dem Stoss

$\frac{m_1}{2} v_f^2 = E_0 - \left(1+\frac{m_1}{m_2}\right)\Delta E$ Ionenenergie nach dem Stoss

$B(E\lambda)$ reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

$f_{E\lambda}(\eta_i,\xi) = f_{E\lambda}(\infty,\xi)\, R_{E\lambda}(\eta_i,\xi)$ energieabhängige Anregungsfunktion

$R_{E\lambda}(\eta_i,\xi)$ quantenmechanische Korrektur für den klassischen Grenzfall $\eta_i = \infty$

$\eta_{i,f} = \frac{Z_1 e \cdot Z_2 e}{\hbar v_{i,f}}$ Wechselwirkungszahl für Coulombfeld

$\xi = \eta_f - \eta_i$ Energieparameter.

Die die Stärke der Wechselwirkung im Coulombfeld charakterisierende Zahl η_i muss wesentlich grösser als 1 sein, wenn von reiner elektromagnetischer Wechselwirkung ohne Mitwirkung von Kernkräften die Rede sein soll. Für den klassischen Grenzfall $\eta_i = \infty$ sind in der oben zitierten Arbeit[1]) die Anregungsfunktionen $f_{E\lambda}(\infty, \xi)$ tabelliert und graphisch dargestellt, während die quantenmechanische Korrektur für den Fall $1 \ll \eta_i \ll \infty$ berechnet wurde. Für elektrische Quadrupolanregung ist der totale Wirkungsquerschnitt:

$$\sigma(E2) = \frac{m_0^2 v_f^2}{Z_2^2 e^2 \hbar^2} B(E2)_{ex} f_{E2}(\eta_i, \xi)$$

$$= \frac{4{,}819}{Z_2^2} \frac{A_1}{\left(1+\frac{A_1}{A_2}\right)^2} (E_0 - \Delta E')^{\mathrm{MeV}} B(E2)_{ex} f_{E2}(\eta_i, \xi) \tag{10}$$

$$\Delta E' = \left(1+\frac{A_1}{A_2}\right) \Delta E \text{ Anregungsenergie im Laborsystem.} \tag{11}$$

Die reduzierte $E2$-Anregungswahrscheinlichkeit $B(E2)_{ex}$ wird in Einheiten von $e^2 \cdot 10^{-48}$ cm^4 angegeben. Für die Wechselwirkungszahl η_i und den Energieparameter ξ ergibt sich:

$$\eta_i = \frac{Z_1 Z_2}{2} \left(\frac{A_1}{10 \cdot E_0^{\mathrm{MeV}}}\right)^{\frac{1}{2}} \tag{12}$$

$$\xi = \eta_i \left[\left(1 - \frac{\Delta E'}{E_0}\right)^{-\frac{1}{2}} - 1\right]. \tag{13}$$

I.3. *Gamma-Winkelverteilungen*

Die Winkelverteilung der Gammastrahlung, welche beim Zerfall eines elektrisch angeregten Zustandes emittiert wird, kann durch die Theorie der Winkelkorrelation[3]) einer hypothetischen γ–γ-Kaskade (Fig. 3), in der der erste Übergang ein reiner 2^λ-Übergang ist, dargestellt werden. Allerdings müssen zusätzliche Koeffizienten $a_k^{(\lambda)}(\nu, \xi)$ eingeführt werden, welche von der Energie E_0 der anregenden Ionen abhängen und den besonderen Anregungsprozess berücksichtigen, während sie von den Spins der beteiligten Zustände und der Multipolordnung des zweiten Kaskadenüberganges unabhängig sind:

$$w(\Theta) = \sum_k a_k^{(\lambda)}(\nu, \xi)\, A_k^{(\lambda)}\, P_k(\cos\Theta). \tag{14}$$

Die Winkelverteilungskoeffizienten $a_k^{(\lambda)}(\nu, \xi)$ der quantenmechanischen Theorie sind ebenfalls in der Arbeit von Alder et al.[1]) tabelliert und graphisch dargestellt und weichen in stärkerem Masse vom klassischen Grenzfall $\nu = 0$ ab, als dies bei den Wirkungsquerschnitten der Fall ist.

Der Wechselwirkungsparameter v hängt nur von der Anregungsenergie ΔE, jedoch nicht von der Ionenenergie E_0 ab:

$$v = 2\,(\eta_i^{-2} - \eta_f^{-2}) = \frac{4}{Z_1 Z_2}\left(\frac{10 A\,\Delta E'}{A_1}\right)^{\frac{1}{2}}. \tag{15}$$

Für $E2$-Anregungsprozesse ist die Winkelverteilung:

$$\begin{aligned} w(\Theta) &= \sum_k^2 a_k^{(2)}(v,\xi)\, A_k^{(2)} P_k(\Theta) \\ &= 1 + a_2^{(2)} A_2^{(2)} P_2(\Theta) + a_4^{(2)} A_4^{(2)} P_4(\Theta) \\ &= 1 + B_2 P_2(\Theta) + B_4 P_4(\Theta)\,. \end{aligned} \tag{16}$$

Für den Gammazerfall kommen wegen der gleichbleibenden Parität der Rotationsniveaus nur $M1$- oder $E2$-Übergänge oder Mischungen beider in Frage. Die γ-γ-Korrelationskoeffizienten $A_k^{(2)}$ haben deshalb die Form:

$$A_k^{(2)} = F_k(2\,I_i I_f)\,\frac{F_k(2\,I_{ff} I_f)\cdot\delta^2 + 2\,F_k(12\,I_{ff} I_f)\cdot\delta + F_k(1\,I_{ff} I_f)}{1+\delta^2}, \tag{17}$$

wobei δ^2 das $E2/M1$-Intensitätsmischungsverhältnis bedeutet und die Koeffizienten F_k aus den Tabellen von Biedenharn und Rose[3]) entnommen werden können, wenn man beachtet, dass:

$$\begin{aligned} F_k(2\,I_i I_f) &= F_k(2\,j_1 j) \\ F_k(12\,I_{ff} I_f) &= F_k(12\,j_1 j) = \frac{[(2j+1)(2L+1)(2L'+1)]^{\frac{1}{2}}}{(-1)^{j-j_1-1}}\, G_k(1\,j_1 j) \end{aligned} \tag{18}$$

$$\begin{aligned} L &= 1 \qquad \text{für } M1\text{-Übergang} \\ L' &= L+1 = 2 \text{ für } E2\text{-Übergang}. \end{aligned}$$

In der in Gl. (16) angeschriebenen Form ist die Winkelverteilungsfunktion zum Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen noch ungeeignet. Man stellt sie vorteilhafter durch eine Entwicklung nach $\cos^{2n}\Theta$-Gliedern ($n = 0, 1, 2, \ldots$) dar:

$$\frac{w(\Theta)}{1-\frac{1}{2}B_2+\frac{3}{8}B_4} = 1 + \frac{\frac{3}{2}B_2 - \frac{30}{8}B_4}{1-\frac{1}{2}B_2+\frac{3}{8}B_4}\cos^2\Theta + \frac{\frac{35}{8}B_4}{1-\frac{1}{2}B_2+\frac{3}{8}B_4}\cos^4\Theta \tag{19}$$

und bildet das Verhältnis der Gammaintensitäten bei den Streuwinkeln Θ und 90°:

$$W(\Theta) = \frac{w(\Theta)}{w(90°)} = 1 + \frac{\frac{3}{2}B_2 - \frac{30}{8}B_4}{1-\frac{1}{2}B_2+\frac{3}{8}B_4}\cos^2\Theta + \frac{\frac{35}{8}B_4}{1-\frac{1}{2}B_2+\frac{3}{8}B_4}\cos^4\Theta. \tag{20}$$

Für die meisten gemessenen Winkelverteilungen kann das Glied 4. Ordnung vernachlässigt werden, weil es nur wenige Prozente vom Glied 2.

Ordnung ausmacht. Man kann deshalb für die Winkelverteilung näherungsweise schreiben:

$$W(\Theta) = \frac{w(\Theta)}{w(90^\circ)} \cong 1 + \beta_2 \cos^2 \Theta \tag{21}$$

$$\beta_2 \cong \frac{\frac{3}{2} B_2}{1 - \frac{1}{2} B_2} \left(1 - 2{,}5 \frac{B_4}{B_2}\right). \tag{22}$$

Die Gammaübergänge zwischen Rotationsniveaus mit der Spindifferenz $\Delta I = 2$ sind reine $E2$-Übergänge, deren Winkelverteilung theoretisch vorausgesagt werden kann. Bei der Spindifferenz $\Delta I = 1$ hat man es mit einer Mischung eines $M1$-Überganges mit einem mehr oder weniger grossen $E2$-Anteil zu tun. Aus der gemessenen Anisotropie β_2 und dem durch die Theorie gegebenen Koeffizienten $a_2^{(2)}$ kann der γ–γ-Korrelationskoeffizient $A_2^{(2)}$ bestimmt werden, aus dem sich das Mischungsverhältnis δ^2 oder die $E2$-Beimischung $e = \delta^2/1+\delta^2$ ermitteln lässt.

I.4. *Zusammenhänge zwischen Gammaübergangswahrscheinlichkeiten, Mischungsverhältnissen, Lebensdauern und Kernmomenten*

a) *Gammaübergangswahrscheinlichkeiten und Lebensdauer*

Für den Vergleich von Gammaübergängen sind die reduzierten (das heisst energieunabhängigen) Übergangswahrscheinlichkeiten $B(\lambda)$ geeignet, die mit den wirklichen $T_\gamma(\lambda)$ und den reziproken (das heisst den Lebensdauern) Gammaübergangswahrscheinlichkeiten τ_γ wie folgt zusammenhängen[4]):

$$\frac{1}{\tau_\gamma} = T_\gamma(\lambda) = \frac{8\pi(\lambda+1)}{\lambda[(2\lambda+1)!!]^2} \frac{1}{\hbar} \left(\frac{E_\gamma}{\hbar c}\right)^{2\lambda+1} B(\lambda)_d. \tag{23}$$

Für die hauptsächlich in Frage kommenden Multipolübergänge gilt:

$$T_\gamma(E2) = 1{,}23 \cdot 10^{-2} (E_\gamma)^5 B(E2)_d \ ^*) \tag{24}$$

$$T_\gamma(M1) = 1{,}59 \cdot 10^8 (E_\gamma)^3 B(M1)_d \ ^*) \ . \qquad (E_\gamma \text{ in keV}) \tag{25}$$

Bei einem $M1+E2$-Übergang ergibt sich für die Gammaübergangswahrscheinlichkeit und die partielle Lebensdauer:

$$\frac{1}{\tau_{\gamma\,(M1+E2)}} = T_\gamma(M1+E2) = T_\gamma(M1) + T_\gamma(E2) = \left(\frac{1}{\delta^2}+1\right) T_\gamma(E2) = \frac{T_\gamma(E2)}{e}, \tag{26}$$

worin:

$$\delta^2 = \frac{T_\gamma(E2)}{T_\gamma(M1)} \quad \text{Mischungsverhältnis} \tag{27}$$

$$e = \delta^2/1+\delta^2 \quad E2\text{-Beimischung} \ . \tag{28}$$

*) $B(E2)$ wird in $e^2 \cdot 10^{-48}$ cm^4 und $B(M1)$ in $(e\hbar/2Mc)^2$ angegeben.

Bezeichnet α_t den totalen Konversionskoeffizienten, so bekommt man die wirkliche Lebensdauer, welche gegenüber der partiellen um den Faktor $1 + \alpha_t$ kürzer ist, aus:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1+\alpha_t}{e} T_\gamma(E2) \,. \tag{29}$$

Im Falle eines 2. Rotationszustandes kommt eine weitere Verkürzung seiner Lebensdauer durch den direkten $E2$-Übergang zum Grundzustand hinzu:

$$\frac{1}{\tau_2} = \frac{1+\alpha_3}{e_3} T_{\gamma_3}(E2) + (1+\alpha_2)\, T_{\gamma_2}(E2) \,. \quad *) \tag{30}$$

b) *Verhältnisse zwischen Übergangswahrscheinlichkeiten*

Im kollektiven Modell von Bohr und Mottelson[2]) werden die reduzierten Gammaübergangswahrscheinlichkeiten $B(E2)$ und $B(M1)$ mit dem elektrischen Quadrupolmoment im Grundzustand Q_0 bzw. mit den gyromagnetischen Faktoren für die inneren Nukleonenbewegungen g_K und die kollektive Rotation g_R in Zusammenhang gebracht:

$$B(E2, I_i \to I_f)_{ex} = \frac{5}{16\pi} Q_0^2 \, \langle I_i\, 2KO \mid I_i\, 2 I_f K\rangle^2 \quad **) \tag{31}$$

$$B(M1, I_f \to I_{ff})_d = \frac{3}{4\pi} (g_K - g_R)^2 K^2 \, \langle I_f\, 1KO \mid I_f\, 1 I_{ff} K\rangle^2 \quad **) \times \left[1 + (-1)^{I_{ff} - \frac{1}{2}} b_0\, \delta_{K,\frac{1}{2}}\right]^2 . \tag{32}$$

Wie in Gl. (3) für die Energie eines Rotationszustandes kommt hier im Falle $K = \frac{1}{2}$ ein Entkopplungsterm mit dem Parameter b_0 hinzu. Mit Hilfe dieser Beziehungen lassen sich folgende Verhältnisse zwischen Übergangswahrscheinlichkeiten bilden, wobei $K = I_0$ gesetzt ist:

$$\frac{B_2(E2)_{ex}}{B_1(E2)_{ex}} = \frac{\langle I_0\, 2KO \mid I_0\, 2,\, I_0+2, K\rangle^2}{\langle I_0\, 2KO \mid I_0\, 2,\, I_0+1, K\rangle^2} = \frac{2\,(I_0+1)}{I_0\,(2I_0+3)} \tag{33}$$

$$\frac{B_3(E2)_d}{B_2(E2)_d} = \frac{\langle I_0+2, 2KO \mid I_0+2, 2, I_0+1, K\rangle^2}{\langle I_0+2, 2KO \mid I_0+2, 2\, I_0 K\rangle^2} = \frac{2I_0+3}{2I_0+1} \cdot \frac{(2I_0)^2}{2(I_0+3)} \tag{34}$$

$$\frac{B_3(M1)_d}{B_1(M1)_d} = \frac{\langle I_0+2, 1KO \mid I_0+2, 1, I_0+1, K\rangle^2}{\langle I_0+1, 1KO \mid I_0+1, 1\, I_0 K\rangle^2} = \frac{2I_0+3}{2I_0+5} \cdot \frac{I_0+1}{I_0+2} \cdot \frac{4\,(I_0+1)}{2\,I_0+1} \tag{35}$$

Aus den gemessenen Wirkungsquerschnitten kann man $B_1(E2)_{ex}$ und $B_2(E2)_{ex}$ bestimmen, woraus sich $B_1(E2)_d$, $B_2(E2)_d$ und $B_3(E2)_d$ aus den Gl. (1) und (34) berechnen und das Verhältnis $B_2(E2)_{ex}/B_1(E2)_{ex}$ mit dem theoretischen Wert (33) vergleichen lassen. In Tabelle II sind für einige Spin I_0 diese Verhältnisse numerisch angegeben.

*) Die Bedeutung der Indizes 1, 2, 3 ist aus der Fig. 7 ersichtlich.

**) Die Vektoradditionskoeffizienten siehe Condon und Shortley[5]).

Die $M1$-Übergangswahrscheinlichkeiten erhält man mit Hilfe der Beziehungen (24),(25) und (27) und des Mischungsverhältnisses δ^2 aus den $E2$-Zerfallswahrscheinlichkeiten:

$$B(M1)_d = 0{,}69 \left(\frac{E_\gamma}{\delta}\right)^2 B(E2)_d \,. \qquad (E_\gamma \text{ in MeV}) \tag{36}$$

Tabelle II

Verhältnisse zwischen Gammaübergangswahrscheinlichkeiten und zwischen Mischungsverhältnissen

$I_0 = K$	$\frac{B_1(E2)_d}{B_1(E2)_{ex}}$	$\frac{B_2(E2)_d}{B_2(E2)_{ex}}$	$\frac{B_2(E2)_{ex}}{B_1(E2)_{ex}}$	$\frac{B_3(E2)_d}{B_2(E2)_d}$	$\frac{B_3(M1)_d}{B_1(M1)_d}$	$\left(\frac{\delta_1}{\delta_3}\right)^2 \left(\frac{E_{\gamma_3}}{E_{\gamma_1}}\right)^2$	$\left(\frac{\delta_1}{\delta_3}\right)^2_{\text{theor.}}$
1/2	0,500	0,333	1,500	0,286	1,200	4,200	1,512
3/2	0,667	0,500	0,556	1,50	1,340	2,145	1,095
5/2	0,750	0,600	0,350	3,03	1,450	1,712	1,035
7/2	0,800	0,667	0,257	4,71	1,535	1,520	1,018
9/2	0,833	0,714	0,204	6,47	1,595	1,411	1,010

c) *Verzweigungs- und Mischungsverhältnisse*

Das Intensitätsverhältnis (Verzweigungsverhältnis) zwischen dem direkten Gammaübergang zum Grundzustand und dem Kaskadenübergang vom 2. zum 1. Rotationsniveau ist gegeben durch:

$$\lambda_2 = \frac{t_2}{t_3} = \frac{T_{\gamma_2}(E2)}{T_{\gamma_3}(E2) + T_{\gamma_3}(M1)} = \left(\frac{E_{\gamma_2}}{E_{\gamma_3}}\right)^5 \frac{B_2(E2)_d}{B_3(E2)_d\,(1 + 1/\delta_3^2)} \,. \tag{37}$$

Das Verzweigungsverhältnis λ_2 liefert somit das Mischungsverhältnis δ_3^2 das mit dem Ergebnis einer Winkelverteilungsmessung verglichen werden kann:

$$e_3 = \frac{\delta^2_3}{1 + \delta^2_3} = \lambda_2 \left(\frac{E_{\gamma_3}}{E_{\gamma_2}}\right)^5 \frac{B_3(E2)_d}{B_2(E2)_d} \tag{38}$$

Die Winkelverteilungen der Gammastrahlung vom Übergang des 1. Rotationsniveaus zum Grundzustand sind für $I_0 \geq 5/2$ nahezu isotrop (die Korrelationskoeffizienten $A_2^{(2)}$ sind kleiner als 6%), so dass man aus ihnen das Mischungsverhältnis δ_1^2 nicht ermitteln kann. Es ist deshalb wertvoll, eine Beziehung zwischen den Mischungsverhältnissen beider Kaskadenübergänge aus der Gl. (36) bilden zu können:

$$\left(\frac{\delta_1}{\delta_3}\right)^2 = \left(\frac{E_{\gamma_1}}{E_{\gamma_3}}\right)^2 \frac{B_1(E2)_d}{B_3(E2)_d} \cdot \frac{B_3(M1)_d}{B_1(M1)_d} = \left(\frac{E_{\gamma_1}}{E_{\gamma_3}}\right)^2 \frac{I_0+1}{I_0+2} \cdot \frac{I_0+3}{I_0} \,. \tag{39}$$

In Tabelle II sind für halbzahlige Spins $(\delta_1/\delta_3)^2 \cdot (E_{\gamma_3}/E_{\gamma_1})^2$ und $(\delta_1/\delta_3)^2_{\text{theor}}$ numerisch angegeben, wobei in $(\delta_1/\delta_3)^2_{\text{theor}}$ das theoretische Verhältnis der Gammaenergien eingesetzt wurde. Man sieht, dass für $I_0 \geq 3/2$ die Mischungsverhältnisse beider Kaskadenübergänge bis auf wenige Prozente Unterschied gleich sein sollten.

d) *Quadrupol- und magnetische Momente*

Aus den Beziehungen (31) und (32) lassen sich das elektrische Quadrupolmoment Q_0 und die gyromagnetischen Faktoren g_K und g_R berechnen, wenn man noch das magnetische Moment des Kerns im Grundzustand μ_0 kennt. Man benötigt hierfür noch eine weitere von BOHR, MOTTELSON und NILSSON[2)6)] angegebene Beziehung für das magnetische Moment eines Rotationszustandes:

$$\mu = \frac{K^2}{I+1}(g_K - g_R)\left[1 - (2I+1)(-1)^{I-\frac{1}{2}} b_0 \delta_{K,\frac{1}{2}}\right] + I g_R \ . \qquad (40)$$

Man kann zeigen, dass für den Fall $K = \frac{1}{2}$ der Entkopplungsparameter b_0 verschwindet, wenn das Verhältnis $B_3(M1)_d / B_1(M1)_d$ den theoretischen Wert 1,20 annimmt. Für das magnetische Moment des Grundzustandes gilt dann:

$$\mu_0 = \frac{I_0^2}{I_0+1}(g_K - g_R) + I_0 g_R \ . \qquad (41)$$

Mit Hilfe der Beziehungen (31), (32) und (41) findet man für die gesuchten Grössen:

$$Q_0 = \left(\frac{10\, B(E2)_{ex}}{\langle I_i\, 2KO \mid I_i\, 2 I_f K\rangle^2}\right)^{\frac{1}{2}} \qquad (42)$$

$$M_0 = \left(\frac{4{,}19\, B(M1)_d}{\langle I_f\, 1KO \mid I_f\, 1 I_{ff} K\rangle^2}\right)^{\frac{1}{2}} \qquad (43)$$

$$g_R = \frac{\mu_0}{I_0} \mp \frac{M_0}{I_0+1} \qquad \text{Vorzeichen} \begin{cases} \delta > 0 & (44) \\ \delta < 0 & (45) \end{cases}$$

$$g_K = \frac{\mu_0}{I_0} \pm \frac{M_0}{I_0(I_0+1)} \ .$$

Das für das zweite Glied in den Ausdrücken für die gyromagnetischen Faktoren zu nehmende Vorzeichen ist durch dasjenige des Mischungsverhältnisses δ bestimmt, wie es sich aus den Winkelverteilungsmessungen ergibt (unter der Voraussetzung, dass das Quadrupolmoment Q_0 positiv ist). In der Tabelle III sind die für die Berechnung von Q_0 und M_0 erforderlichen Vektoradditionskoeffizienten[5)] numerisch angegeben.

Tabelle III

Vektoradditionskoeffizienten zur Berechnung von Q_0 und M_0

I_0	$\langle I_0\, 2KO \mid I_0\, 2,\, I_0+1,\, K\rangle^2$ γ_1	$\langle I_0\, 2KO \mid I_0\, 2,\, I_0+2,\, K\rangle^2$ γ_2	$\langle I_0+1,\, 1KO \mid I_0+1,\, 1\ I_0 K\rangle^2$ γ_1	$\langle I_0+2,\, 1KO \mid I_0+2,\, 1,\, I_0+1,\, K\rangle^2$ γ_3
1/2	0,400	0,600	0,333	0,400
3/2	0,514	0,286	0,267	0,357
5/2	0,476	0,166	0,214	0,311
7/2	0,424	0,109	0,178	0,273

e) *Deformationsparameter und Trägheitsmoment*

Für einen rotationsellipsoidischen Kern mit der Differenz ΔR zwischen dem grössten und kleinsten Kernradius und einem mittleren Radius $R_0 = 1{,}2 \cdot A^{1/3} \cdot 10^{-13}$ cm kann ein Deformationsparameter definiert werden:

$$\beta = \frac{4}{3}\left(\frac{\pi}{5}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{\Delta R}{R_0} = 1{,}06 \frac{\Delta R}{R_0}, \tag{46}$$

der unter der Annahme eines gleichmässig geladenen Kerns mit dem elektrischen Quadrupolmoment zusammenhängt:

$$Q_0 = \frac{3}{(5\pi)^{\frac{1}{2}}} z R_0^2 \beta (1 + 0{,}16\,\beta + \cdots). \tag{47}$$

Die gemessenen Quadrupolmomente gestatten eine Bestimmung des Deformationsparameters:

$$\beta = \frac{(1 + 0{,}64\,\beta_0)^{\frac{1}{2}} - 1}{0{,}32} \qquad \beta_0 = \frac{91{,}6\,Q_0}{Z \cdot A^{2/3}}. \tag{48}$$

Das aus den Gl. (4) bis (7) bestimmte, effektive Trägheitsmoment $\Im$ kann einerseits mit dem Trägheitsmoment $\Im_{\text{rig}}$ eines starren, ellipsoidischen Kerns und andrerseits mit dem Trägheitsmoment $\Im_{\text{irrot}}$ einer umlaufenden, die Kerndeformation erzeugenden Materiewelle verglichen werden:

$$\Im_{\text{rig}} = \frac{2}{5} A M R_0^2 (1 + 0{,}31\,\beta \ldots) = 20{,}7 \left(\frac{A}{100}\right)^{5/3} \times (1 + 0{,}31\beta) \cdot 10^{-48}\,[\text{g cm}^2] \tag{49}$$

$$\Im_{\text{irrot}} = \frac{2}{5} A M R_0^2 \beta^2 (0{,}89 + \cdots) = 18{,}4 \left(\frac{A}{100}\right)^{5/3} \beta^2 \cdot 10^{-48}\,[g\,\text{cm}^2]. \tag{50}$$

II. Messanordnung und Auswertung

II.1. *Beschleunigungsanlage*

Das Cyclotron der ETH wurde für die vorliegende Arbeit mit Protonen einer reduzierten Energie von $(4{,}05 \pm 0{,}05)$ MeV betrieben. Der ausgelenkte Protonenstrahl beträgt am Austritt der Vakuumkammer rund 10 μA und wird mit Hilfe eines Paares magnetischer Quadrupollinsen (Fig. 4) in einen Messraum fokussiert, der durch eine etwa 2 Meter dicke Mauer gegen die Strahlung der Maschine abgeschirmt ist (Fig. 5).
Durch eine Blende von 10 mm Durchmesser kann im Messraum ein Protonenstrom von 0,5 bis 1 μA erzielt werden. Die magnetischen Linsen verstärken die Stromdichte im Messraum etwa 50fach. Bei diesen Bedingungen erfordert jede Linse eine Erregerleistung von 2,1 A · 200 V = 420 W und ergibt bei ca. 6000 Amperewindungen pro Spule einen Feldgradienten von 820 Gauss/cm längs eines effektiven Weges von 10 cm.

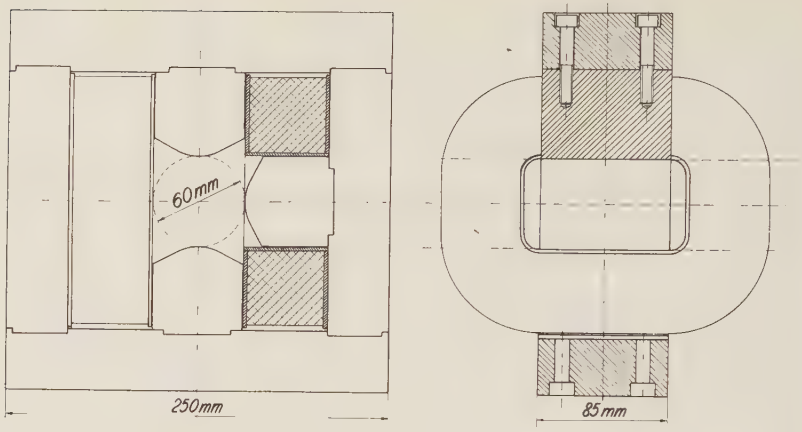


Fig. 4
Magnetische Quadrupollinsen für Strahlfokussierung

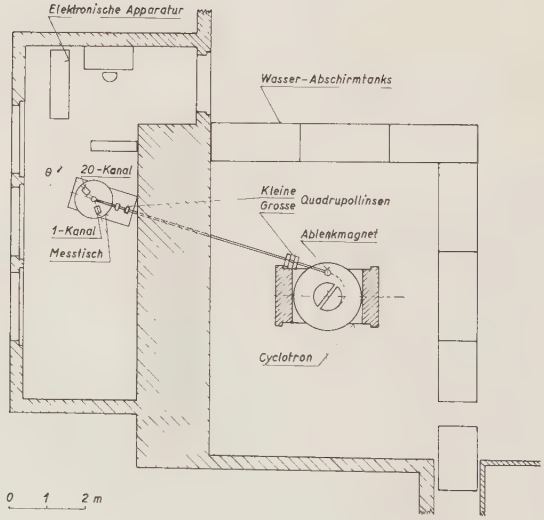


Fig. 5
Übersichtsplan von Cyclotron- und Messraum

Zwei dicht aneinander gestellte Quadrupollinsen haben einen ziemlich grossen Astigmatismus, der allerdings gerade geeignet ist, die stark astigmatische Quelle im Cyclotron einigermassen zu kompensieren. Das Strahlrohr für den ausgelenkten Protonenstrahl, ein Ablenkmagnet, der den Strahl richtig ins Fokussiersystem einführt, und die Quadrupollinsen sind in der Abbildung 1 ersichtlich*).

Die Verwendung eines Cyclotrons für die Ausführung von Coulombanregungsexperimenten und Gammawinkelverteilungsmessungen bereitet gegenüber einem Van de Graaff-Beschleuniger einige zusätzliche Schwierigkeiten: Im Messraum steht ein Protonenstrom zur Verfügung, der kleiner, energetisch weniger scharf und vor allem weit weniger stabil ist, als dies bei Linearbeschleunigern im allgemeinen der Fall ist. Ferner ist das Umstellen auf eine andere Energie umständlich. Ein Cyclotron hat auch den Nachteil, dass der nutzbare Strom im besten Falle etwa 1% von dem auf den Dees und auf Blenden in Störstrahlung umgewandelten Protonenstrom ist. Die Instabilität des Targetstromes infolge Magnetfeldschwankungen, Änderungen der Hochfrequenz- und Auslenkspannung und Unterbrechungen bei Zündungen im Deesystem kann zu systematischen Fehlern bei der Messung führen. Der kleine Targetstrom und die relativ kleinen Anregungswirkungsquerschnitte machen oft längere Messungen notwendig.

II. 2. *Messapparatur*

Die Messapparatur ist aus der Abbildung 2 und der Fig. 6 ersichtlich*). Der aus dem Cyclotronraum in den Messraum fokussierte Protonenstrahl gelangt durch eine auswechselbare, isolierte Bleiblende mit einem Lochdurchmesser D in eine hochisoliert aufgestellte Messkammer aus Aluminium, die in der horizontalen Messebene der Gammastrahlung aus der Target 1 mm Material zur Absorption bietet. Der unter Vakuum verstellbare Halter kann zwei Targets von 23 mm Durchmesser fassen und gegenüber dem Strahl in 45°-Position gebracht werden. Die untere Target wird im allgemeinen für Eichzwecke benützt. Die Messkammer ist für Wirkungsquerschnittsmessungen über ein Polyäthylenkabel und ein durch einen Polyäthylenkondensator überbrücktes, elektrostatisches Voltmeter von 200 Volt geerdet.

Auf einem mit Gradeinteilung versehenen, justierbaren Holztisch von 1 Meter Durchmesser sind zwei Szintillationsdetektoren in einstellbarem

*) Unserem Techniker, Herrn P. Güntert, sei für die sorgfältige Ausführung dieser Einrichtungen besonders gedankt.

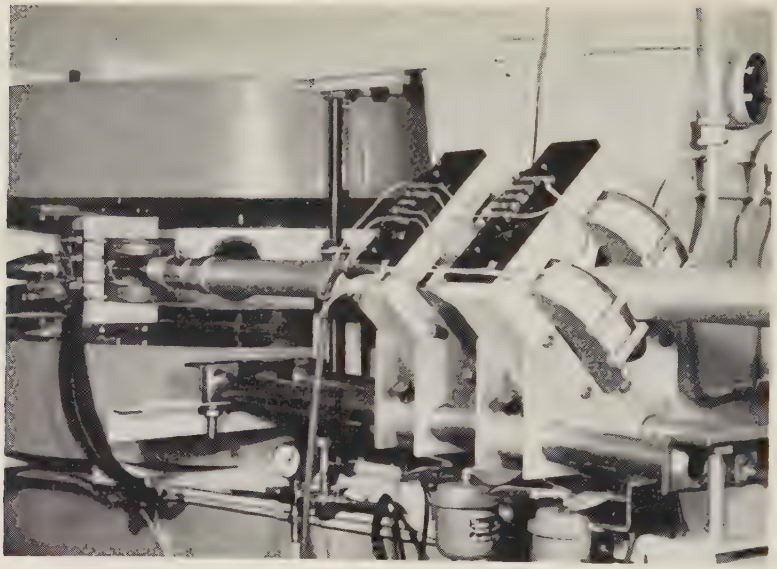


Abb. 1

Strahlauslenkung im Cyclotronraum mit Strahlrohr, Ablenkmagnet (links) und Quadrupollinsen (rechts)

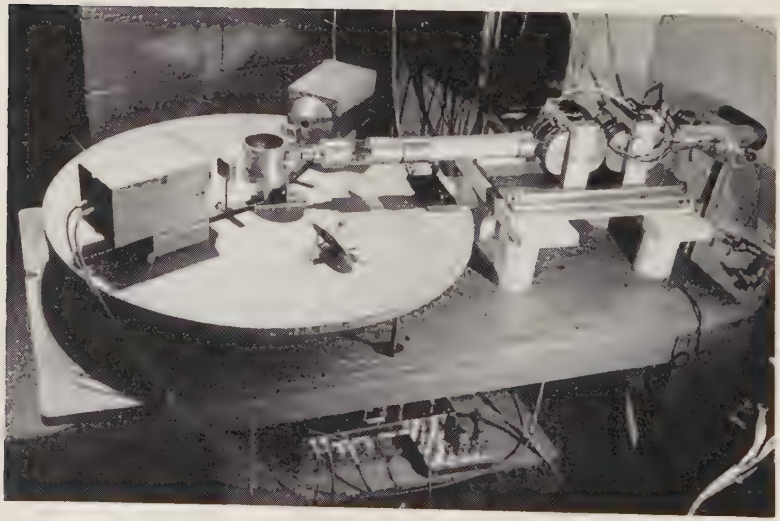


Abb. 2.

Messapparatur für Wirkungsquerschnitts- und Gammawinkelverteilungsmessungen

Abstand R um die Messkammer drehbar angeordnet. Die Gammastrahlung wird mit zwei NaI(Tl)-Kristallen von 1 × 1 inch und zwei Du-Mond-Photomultipliern 6292 registriert. Ein Detektor wird für alle Messungen auf den Winkel 135° eingestellt und ist als Monitor mit einem 1-Kanal-Impulsanalysator verbunden. Der andere Detektor wird für Wirkungsquerschnittsmessungen auf $\Theta = 55°$*) eingestellt, für Winkelverteilungsmessungen von $\Theta = 0$ bis 90° bewegt und ist an einem 20-Kanal-Impulsanalysator angeschlossen, der durch Verschieben des Impulsspektrums um $\frac{1}{4}$, $\frac{1}{2}$ und $\frac{3}{4}$ Kanäle die Aufnahme eines Gammaspektrums mit 80 Messpunkten erlaubt. Eine Beschreibung dieser Apparatur findet sich in einer Dissertation von H. Guhl[7]).

Um eine zuverlässige Funktion des Monitors zu erzielen, muss im 1-Kanal-Impulsanalysator die Röntgenlinie abgeschnitten werden, weil die Instabilitäten des Protonenstrahls zu Variationen der Absorption der

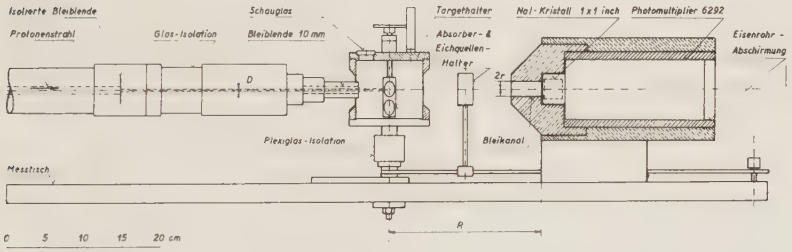


Fig. 6.

Messapparatur für Wirkungsquerschnitts- und Gammawinkelverteilungsmessungen.

Röntgenlinie in der Target Anlass geben und eine gewünschte Monitorgenauigkeit von 1% verunmöglichen. Um die totale Ladung auf die Target während einer Wirkungsquerschnittsmessung zu bestimmen, wird jeweils die Stoßzahl am Vorwahlzähler des Monitors abgelesen, die sich für die Aufladung einer geeigneten Kapazität von + 100 bis auf + 200 Volt ergibt. Das Vakuum in der Messkammer und im Strahlrohr muss gut sein, wenn die Stromverluste durch die vom Strahl erzeugten Gasionen gering sein sollen. Durch Messung der oben genannten Vorwahlzählerzahl für verschiedene Intensitäten des Protonenstrahls kann diese Bedingung geprüft werden; bei gutem Vakuum kann mit einer Genauigkeit der Ladungsbestimmung von 5 bis 10% gerechnet werden.

*) Für diesen Winkel braucht bei der Bestimmung des totalen Wirkungsquerschnittes die Anisotropie der betreffenden Gammastrahlung nicht berücksichtigt zu werden.

II.3. *Targetherstellung*

Für die Messungen an den Metallen Gold, Tantal und Silber standen Folien zur Verfügung, während die übrigen, untersuchten Elemente in Form von feinem Pulver erhältlich waren, das in einer Presse zu dünnen Pillen verarbeitet werden musste. Die Dicke der Pillen wurde jeweils so klein als möglich gewählt, um die Absorption der Gammastrahlen in der Target nicht unnötig zu vergrössern.

Die Herstellung geeigneter Pillen bereitete einige Schwierigkeiten: Es zeigte sich, dass nur ganz feines Pulver verwendet werden darf. Eine richtig abgewogene Menge Pulver wird in einer ölgehärteten Pillenpresse aus Söderfors-Stahl bei etwa 5 Tonnen Druck zu einer Pille von 10 mm Durchmesser gepresst und deren Gewicht nachher bestimmt. Die freitragend bestrahlten Pillen waren nicht beständig; sie zeigten nach einiger Zeit Risse, wurden für Protonen zum Teil durchsichtig und verunmöglichten Winkelverteilungsmessungen. Diese Schwierigkeit konnte durch Aufkleben der Pillen mit Perocellinlack auf ein dünnes Nickelblech behoben werden, indem das Blech für eine bessere Halterung und Wärmeabfuhr aus der bestrahlten Pille sorgt. Allerdings muss damit eine zusätzliche, winkelabhängige Absorption der Gammastrahlen im Nickel in Kauf genommen werden.

Die Absorption in der Target beträgt für die gemessenen, niedrigen Gammalinien einiger seltener Erden je nach dem Beobachtungswinkel 10–20%. Die Instabilitäten des Protonenstrahls haben in den nicht ganz gleichmässig dicken Pillen Variationen der Absorption zur Folge, die sich bei den Winkelverteilungsmessungen als systematische Fehler äussern. Solche Messungen können deshalb weniger genau sein als für Targets aus den homogeneren Metallfolien.

II.4. *Auswertung der Messungen*

a) *Gammaspektren*

Für die Energieeichung der Gammalinien wurden folgende Eichquellen benützt: Cd^{109}(87 keV), Lu^{177} (113 und 208 keV), Na^{22} (511 keV), Cs^{137} (661 keV), Co^{60} (1176 und 1330 keV) und ferner die relativ gut bekannten Energien der beiden Rotationsniveaus des Ta^{181} (136 und 303 keV). Die Genauigkeit der Energieeichung dürfte etwa $\pm$ 2% betragen.

Bei Rotationsspektren von Kernen mit dem Spin $I_0 \geq 5/2$ sind die beiden Gammalinien des Kaskadenüberganges von nicht sehr verschiedener Energie und lassen sich deshalb mit Szintillationsspektrometern nicht völlig trennen. Der schwächere Übergang vom 2. zum 1. Rotationsniveau erscheint an der oberen Flanke des stärkeren Überganges vom 1. Niveau

zum Grundzustand als Ausbuchtung. Eine Bestimmung der Gammaenergie, welche ja gleich der Differenz der Anregungsenergien beider Rotationsniveaus sein sollte, gelingt, wenn das Spektrum logarithmisch aufgetragen wird und nach Abzug des Untergrundes die beiden benachbarten Linien in Parabeln aufgelöst erscheinen. Dies ist für das Spektrum des Ta^{181} in Figur 11 gezeigt.

b) *Wirkungsquerschnitte und Anregungswahrscheinlichkeiten*

Für die gemessenen Anregungsenergien ΔE_1 und ΔE_2 sind die totalen Wirkungsquerschnitte $\sigma(E2)/B(E2)$ nach Gl. (10) für eine Protonenenergie von 4,05 MeV bestimmt worden.

Aus den Gammaspektren wurden die Flächeninhalte der Photospitzen nach zwei Methoden ermittelt, wie dies für das Ta^{181} in den Figuren 10 und 11 gezeigt ist: In dem linear aufgetragenen Spektrum liegen in den Flanken der Photospitzen immer einige Messpunkte recht gut auf Geraden, die zu einem Dreieck mit einer Basis auf der Höhe eines mittleren Untergrundes ergänzt sind. Vergleicht man die Inhalte dieser Dreiecke mit denjenigen der im logarithmisch aufgezeichneten Spektrum konstruierbaren Parabeln, so findet man innerhalb $\pm$ 5% Übereinstimmung. Für die in den Flanken der 1. Niveaus erscheinenden Kaskadenübergänge findet man eine $\pm$ 10%ige Übereinstimmung der Differenzflächen im linearen Spektrum (siehe schraffierte Fläche in Fig. 10) mit den entsprechenden Parabelflächen im logarithmischen Spektrum. Die so ermittelten Gammaquantenzahlen werden nach Berücksichtigung der Absorptionen in der Target, in der Messkammerwand, einem eventuellen Absorber und im Kristallhalter durch die Photospitzen-Ansprechwahrscheinlichkeit dividiert, wobei die von MAEDER et al.[8]) angegebenen Werte benützt werden. Aus den so korrigierten, wahren Gammaquantenzahlen $\Gamma_{\exp}$ lassen sich die reduzierten Anregungswahrscheinlichkeiten $B(E2)_{ex}$ für die betreffenden Niveaus errechnen:

$$\varepsilon B(E2)_{ex} = \frac{\Gamma_{\exp} \cdot \left(\frac{dE}{d\varrho\, x}\right)_0}{\frac{\sigma(E2)}{B(E2)} \cdot E_0 \cdot N_G \cdot C \frac{\delta E_\lambda}{E_0} \cdot \omega \cdot P} \tag{51}$$

Hierin bedeuten:

$$\varepsilon = \frac{\text{Beobachtete Gammaquanten}}{\text{Anzahl Anregungsprozesse}}$$

$\left(\frac{dE}{d\varrho\, x}\right)_0$ = Bremsvermögen der Protonen bei der Maximalenergie E_0

$\omega = \left(\frac{r}{2R}\right)^2$ Beobachtungs-Raumwinkel (siehe Fig. 6)

$$\frac{\sigma(E2)}{B(E2)} = \frac{4{,}819}{(1+1/A_2)^2} \cdot \frac{(E_0 - \Delta E')^{\text{MeV}}}{Z_2^2} \cdot f_{E2}(\eta_{i_0}, \xi_0)$$

$N_G = \frac{h \cdot n_X \cdot 6{,}02 \cdot 10^{23}}{M}$ Anzahl angeregte Kerne X pro Gramm bei der molekularen Häufigkeit n_X und der Isotopenhäufigkeit h in einer Verbindung vom Molekulargewicht M

$C\,\frac{\delta E_\lambda}{E_0} = \frac{\int_{E_0}^{0} \sigma(E)\, d(\varrho x)}{\sigma(E_0)\,\frac{E_0}{(dE/d\varrho x)_0}}$ effektive Targetdicke nach Alder et al.[1])

$P = \frac{Q}{e}$ Protonenzahl für die gemessene Ladung Q.

Das Bremsvermögen der Protonen wurde für Gold, Tantal, Zinn und Kupfer gemessen und mit dem bekannten von Aluminium[9]) verglichen. Das Bremsvermögen für andere Elemente wurde dann durch Interpolation gewonnen. Ebenso ist die Reichweite für 4,05-MeV-Protonen angenähert bestimmt worden, um die Targetdicken günstig wählen zu können*).

Um aus den so ermittelten $\varepsilon B(E2)_{ex}$-Werten die reduzierten Anregungswahrscheinlichkeiten selbst zu bekommen, müssen die totalen $M1$- und $E2$-Konversionskoeffizienten bekannt sein. Diese wurden durch Interpolation aus neueren Werten von Sliv[10]) (K-Konversionskoeffizienten) und älteren von Rose (L- und M-Konversionskoeffizienten) erhalten*). Unter Berücksichtigung der nicht beobachteten Konversionsübergänge (siehe Fig. 7) lassen sich auch die ε-Verhältnisse ermitteln. Bezeichnen wir mit λ_1 und λ_2 die beobachteten Gammaintensitätsverhältnisse $f_1 : f_3$ bzw. $f_2 : f_3$, so ergibt sich für diese ε-Verhältnisse:

$$\lambda_1 = \frac{f_1}{f_3} \qquad \lambda_2 = \frac{f_2}{f_3} \tag{52}$$

$$\varepsilon_1 = \frac{1}{1+\alpha_1}\,\frac{\lambda_1(1+\alpha_1)/(1+\alpha_3)}{\lambda_1(1+\alpha_1)/(1+\alpha_3)-1} \approx \frac{1}{1+\alpha_1} \text{ für } \lambda_1 \gg 1 \tag{53}$$

$$\varepsilon_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_2(1+\alpha_2)+(1+\alpha_3)} \qquad \varepsilon_3 = \frac{1}{\lambda_2(1+\alpha_2)+(1+\alpha_3)}. \tag{54}$$

Die Genauigkeit, mit der die reduzierten Anregungswahrscheinlichkeiten angegeben werden können, ist durch viele Unsicherheiten, welche in die Auswertung eingehen, beschränkt. Erwähnt seien die Absorption in den verschiedenen Materialien zwischen Target und Kristall, die Ansprechwahrscheinlichkeit für die Photospitze, das Bremsvermögen der Protonen, die Ladungsbestimmung und die Konversionskoeffizienten.

*) Wir sind Herrn R. Szostak von der Technischen Universität Berlin für die Ausführung dieser Arbeit zu Dank verpflichtet.

Eine Angabe von Fehlergrenzen ist bei Vorhandensein aller dieser Unsicherheiten schwierig; die absolute Genauigkeit dürfte jedoch innerhalb $\pm$ 50% und die relative Genauigkeit unter den angegebenen Anregungswahrscheinlichkeiten etwa $\pm$ 20% betragen.

c) *Gamma-Winkelverteilungen*

Für die Auswertung von Gamma-Winkelverteilungen dicker Targets wird von ALDER et al.[1]) empfohlen, die energieabhängigen Koeffizienten $a_k^{(2)}(\nu, \xi)$ für eine reduzierte Protonenenergie abzulesen:

$$E_{\mathrm{red}} = \frac{E_0}{1 + C\,(\delta E_\lambda / E_0)}\,. \tag{55}$$

Die Gammaspektren sind für die Winkel $\Theta = 0$, 15, 30, 45, 60, 75 und 90 jeweils mit genügender Statistik (statistischer Fehler höchstens $\pm$ 1,5%) aufgenommen worden. Die Stosszahlen einiger repräsentativer Messpunkte in der Photospitze wurden addiert und von der Summe ein individueller, angepasster Untergrund abgezogen, wie dies in den im 3. Teil dieser Arbeit wiedergegebenen Spektren durch die schwach ausgezogenen Linien angedeutet ist.

Die Absorption in der Target wurde in der folgenden Weise berücksichtigt: Eine mittlere Eindringtiefe $\overline{\varrho x}$ der Protonen in die Target kann wie folgt erhalten werden:

$$\overline{\varrho x} = \frac{\int_{E_0}^{0} \sigma(E)\, d(\varrho x)}{\sigma(E_0)} = C\,\frac{\delta E_\lambda}{E_0}\,\frac{E_0}{(dE/d\varrho x)_0}\,. \tag{56}$$

Unter der Annahme, dass alle Gammaquanten in dieser Tiefe aus einer Punktquelle emittiert werden, wurde die vom Streuwinkel Θ abhängige Absorption in der Target berechnet. Die Richtigkeit dieser Annahmen wird durch die isotrop sich ergebende Winkelverteilung der 136-keV-Linie des Ta^{181} (Fig. 12) bestätigt. Die so korrigierten und durch die Intensität bei $\Theta = 90^\circ$ dividierten Werte werden in Funktion von $\cos^2\Theta$ aufgetragen und zur Bestimmung einer Anisotropie β_2 nach der Methode der kleinsten Quadrate durch eine Gerade angenähert:

$$W(\Theta) = \frac{w(\Theta)}{w(90^\circ)} = 1 + \beta_2 \cos^2\Theta \tag{57}$$

$$\beta_2 = \frac{\sum_K [W(\Theta_K) - 1] \cos^2\Theta_K}{\sum_K \cos^4\Theta_K} = \frac{\sum_K [W(\Theta_K) - 1] \cos^2\Theta_K}{2{,}75}\,. \tag{58}$$

Bei $M1 + E2$-Übergängen wird das Mischungsverhältnis δ^2 auf folgende Weise bestimmt: Für viele Winkelverteilungen ist $B_4 \ll B_2$ (siehe Gl. (16)); der Korrelationskoeffizient $A_2^{(2)}$ kann dann leicht berechnet und

mit dem theoretischen Ausdruck verglichen werden (vgl. Gl. (16), (17), (21) und (22)):

$$A_2^{(2)} = \frac{a\,\delta^2 + b\,\delta + c}{1+\delta^2} = (a-c)\,e \pm b\sqrt{e(1-e)} + c \cong \frac{2\,\beta_2}{(3+\beta_2)\,a_2^{(2)}}. \quad (59)$$

Man erkennt leicht, dass über dem $E2$-Anteil e aufgetragen $A_2^{(2)}$ eine schiefliegende Ellipse darstellt, die die Senkrechten $e = 0$ (reiner $M1$) und $e = 1$ (reiner $E2$) in den Punkten $A_2^{(2)} = c$ bzw. $A_2^{(2)} = a$ berührt. Für eine gemessene Anisotropie β_2 lassen sich jeweils zwei Werte für die $E2$-Beimischung ablesen, wobei allerdings der eine Wert sich aus Messungen von Konversionselektronen oder des Verzweigungsverhältnisses ausschliessen lässt.

Für die Genauigkeit der einzelnen Messpunkte in den Winkelverteilungen kommen folgende Fehlerquellen in Betracht:

1. Statistischer Fehler: Für das 1. Rotationsniveau ist der statistische Fehler wegen der grossen Impulszahl gering; meistens beträgt er aber für die Übergänge aus dem 2. Rotationsniveau 1–1,5%.

2. Absorptionsfehler: Bei Gammaenergien unter 100 keV beträgt die Variation der Absorptionskorrektur zwischen 45 und 0 bzw. 90° höchstens 10%, so dass man den Fehler auf 1% abschätzen kann.

3. Untergrundsfehler: Der abzuziehende Untergrund kann bei Übergängen aus dem 2. Rotationsniveau bis zu 50% der registrierten Impulszahl betragen. Die gemessenen Winkelverteilungen lassen jedoch erkennen, dass der Abzug eines angepassten Untergrundes doch keine so grossen Fehler ergibt, wie man erwarten könnte.

Auf Grund dieser Abschätzungen ist für die Messpunkte der absolute Fehler $\pm$ 2 oder $\pm$ 3%. Da zur Bestimmung der Anisotropien mehrere Messpunkte benützt werden, sind diese mit einem kleineren absoluten Fehler von $\pm$ 1 oder $\pm$ 2% behaftet.

III. Messergebnisse

Die Messergebnisse für die untersuchten Kerne werden im 1. Abschnitt anhand der wiedergegebenen Gammaspektren und Winkelverteilungsmessungen diskutiert. Die Niveauschema mit den Anregungsenergien und Spinzuordnungen und mit den relativen Häufigkeiten und Multipolordnungen der Gammaübergänge sind bei den Gammaspektren mit eingezeichnet (Legende siehe Fig. 7). Mutmassliche Angaben sind in runde Klammern gesetzt und aus anderen Arbeiten entnommene Angaben durch kleine Buchstaben vermerkt. Im 2. Abschnitt werden die Messresultate in der Tabelle XII und den Figuren 24 und 25 zusammengefasst und zur Berechnung der Lebensdauern, elektrischen Quadrupolmomente, Deformationsparameter, Trägheitsmomente und gyromagnetischen Faktoren verwendet.

III.1. *Diskussion der Messergebnisse*

Au^{197}

Coulomb-Anregungsexperimente an Gold wurden vorwiegend mit Protonen gemacht[11)12)13)14)15)], ebenso Winkelverteilungsmessungen für die 280- und 550-keV-Linien[11)16)17)]. Wir haben die Winkelverteilungsmessungen im Hinblick auf die von ALDER et al.[1)] neu berechneten Koeffizienten $a_k^{(2)}(\nu,\xi)$ zur Ermittlung des Mischungsverhältnisses für den 280-keV-Übergang wiederholt.

Nach dem von BERNSTEIN und LEWIS[13)] angegebenen Niveauschema gehören das 280- und 550-keV-Niveau einem anomalen Rotationsspektrum an, während die Niveaus bei 77 und 268 keV wahrscheinlich

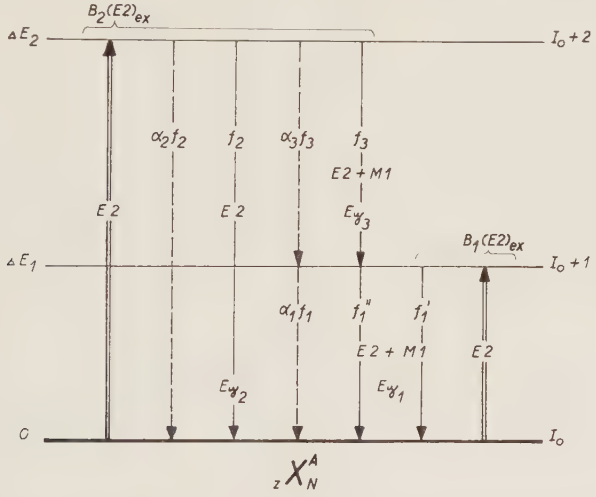


Fig. 7

Rotationsspektrum bei elektrischer Anregung von u-g-Kernen

———	Elektrische Anregung.	$\alpha_{1,2,3}$	totale Konversionskoeff.
———	Gamma-Übergänge.	$B_{1,2}(E2)_{ex}$	Anregungswahrscheinlichkeit.
– - - –	Konversionsübergänge.	I_0	Spin im Grundzustand.
$\Delta E_{1,2}$	Anregungsenergien.	z	Protonenzahl.
$E_{\gamma 1,2,3}$	Gammaenergien.	N	Neutronenzahl.
$f_{1,2,3}$	Gammaintensitäten.	A	Nukleonenzahl.

als Einteilchenzustände zu interpretieren sind. Die beiden Kaskadenübergänge von 270 und 280 keV im Rotationsspektrum lassen sich nicht trennen; dies muss bei der Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeit $B_1(E2)_{ex}$ berücksichtigt werden. Das Verzweigungsverhältnis des 550-keV-Niveaus wurde aus Koinzidenzmessungen*) zu $\lambda_2 = 19$ bestimmt.

*) H. GUHL und B. LOBKOWICZ (unveröffentlicht).

Beobachtet wurde das Intensitätsverhältnis:

$$\mu = \frac{f_1+f_3}{f_2} = \begin{cases} 2{,}67 \text{ für dicke Target} \\ 1{,}5 \text{ für dünne Target} \end{cases}$$

woraus sich für das ε_1-Verhältnis ergibt:

$$\varepsilon_1 = \frac{f_1+f_3}{f_1'(1+\alpha_1)} = \frac{1+f_1''/f_1'(1+(1+\alpha_1)(1+\alpha_3))}{1+\alpha_1} \cong \frac{1+2\,f_1''/f_1'}{1+\alpha_1} = \begin{cases} 0{,}74 \text{ für dicke Target} \\ 0{,}77 \text{ für dünne Target.} \end{cases}$$

$$2\,\frac{f_1''}{f_1'} = \frac{2}{\mu\lambda_2 - 2} = \begin{cases} 0{,}04 \text{ für dicke Target} \\ 0{,}07 \text{ für dünne Target,} \end{cases}$$

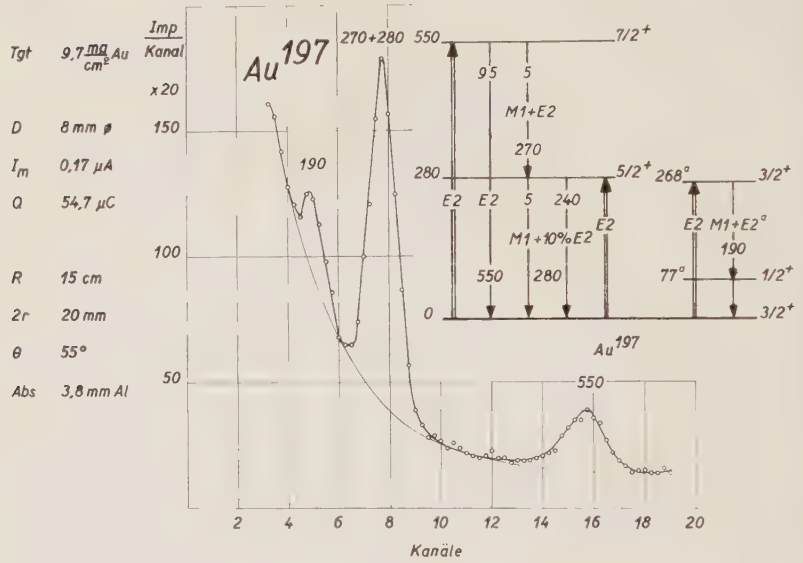


Fig. 8

Gammaspektrum bei Coulomb-Anregung von Au^{197} ,

[a] Niveaus aus Bernstein and Lewis, Phys. Rev. *200*, 1345 (1955).

Tgt Target, Dicke in mg/cm².
D Protonenstrahl-Durchmesser (Fig. 6).
I_m Mittlerer Targetstrom.
Q Registrierte Protonenladung.
R Abstand Target–NaI-Kristall (Fig. 6).
2r Bleikanalöffnung vor NaI-Kristall.
Θ Beobachtungswinkel (Fig. 5).
Abs Absorber zwischen Target und NaI-Kristall.

Für den 190-keV-Übergang ergeben sich sowohl aus dem gemessenen K/L-Verhältnis als auch aus dem α_K-Wert[18]) mit den neueren K-Konversionskoeffizienten von Sliv[10]) eine $E2$-Beimischung von 11%, was für die Angabe des totalen Konversionskoeffizienten und die Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeit benötigt wird.

Die Messungen, die wir für Gold und Tantal an dünnen Targets ausgeführt haben, ergeben etwa 20–40% grössere Anregungswahrscheinlichkeiten als bei dicken Targets. Diese Diskrepanz könnte von der Unsicherheit des Bremsvermögens $(dE/d\varrho x)_0$ oder der Korrektur $C\delta E_\lambda/E_0$ für dicke Target herrühren. Ein Vergleich mit den von anderen Arbeiten entnommenen Messwerten erfolgt in Tabelle IV.

Tabelle IV

Vergleich der Anregungswahrscheinlichkeiten verschiedener Arbeiten bei Coulomb-Anregung von Au^{197} (ΔE = Energie des angeregten (Rotations-)Niveaus)

	ΔE keV	Vorliegende Arbeit dicke T.	Vorliegende Arbeit dünne T.	Cook [11]	Stelson [12]	Bernstein [13]	Elbek [15]
$B_2'(E2)_{ex}$	268		0,055		0,07	0,13	0,066
$B_1(E2)_{ex}$	280	0,20	0,24	0,18	0,326	0,334	0,30
$B_2(E2)_{ex}$	550	0,23	0,32	0,315	0,423		0,42
B_2/B_1		1,15	1,3	1,75	1,3		1,4

Aus den bisherigen Messergebnissen findet man folgende Mittelwerte:

$$B_2'\,(E2)_{ex} = 0{,}08 \pm 0{,}02$$
$$B_1\,(E2)_{ex} = 0{,}26 \pm 0{,}04 \qquad B_2/B_1 = 1{,}3 \pm 0{,}2\,.$$
$$B_2\,(E2)_{ex} = 0{,}34 \pm 0{,}06$$

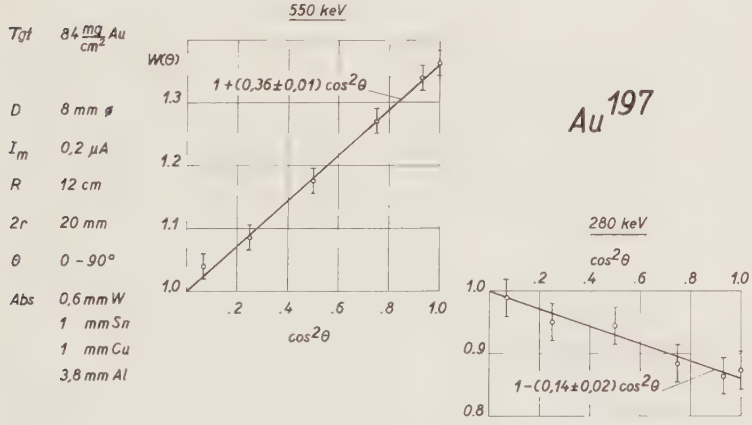


Fig. 9.

Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von Au^{197}

Die Anisotropie von -14% für die 280-keV-Linie stimmt gut mit einer Messung von Goldburg und Williamson[16]) überein und ergibt ein Mischungsverhältnis von $\delta_1^2 = -0{,}11 \pm 0{,}06$. Dagegen haben McGowan und Stelson[17]) $-17{,}5\%$ Anisotropie gemessen, was mit dem gleichen Winkelverteilungskoeffizienten $a_2^{(2)} = 0{,}60$ wie oben ein Mischungsverhält-

nis von $\delta_1^2 - 0{,}20$ gibt. Die bei nur 3 MeV Protonenenergie gemachte Messung von Cook et al.[11]) führt mit einem neueren Winkelverteilungskoeffizienten auf ein imaginäres Mischungsverhältnis. Eine Zusammenstellung der Mischungsverhältnisse, die sich aus der Messung der Konversionselektronen[13])[18]) und einer γ–γ-Winkelkorrelation[20]) ermitteln lassen, ist in Tabelle V. McGowan und Stelson[19]) geben eine Evidenz für die Reduktion des $M1$-K-Konversionskoeffizienten der 280-keV-Linie um 21%. Nach neueren Rechnungen von Sliv[10]) müsste diese Reduktion sogar 27% betragen, wodurch das Mischungsverhältnis noch kleiner ausfällt. Damit nähern sich diese aus der Messung der Konversionselektronen erhaltenen Mischungsverhältnisse dem Ergebnis unserer Winkelverteilungsmessung, das übrigens sehr gut durch das γ–γ-Winkelkorrelationsexperiment[20]) bestätigt wird.

Tabelle V

Mischungsverhältnisse für den 280-keV-Übergang im Au^{197}
[a] Interpolierte Werte nach Sliv[10])

		Bernstein[13]) K/L	Joly et al.[18]) K/L	Joly et al.[18]) α_K	Kane[20]) γ–γ-Korrelat.
Messung		5,5	5,3	$0{,}29 \pm 0{,}03$	
Theorie	$M1$	6,1	5,8	0,333[a]	
	$E2$	2,0	1,5	0,074[a]	
δ_1^2	$E2/M1$	0,33	0,15	$0{,}20 \pm 0{,}13$	$0{,}12 \pm 0{,}03$

Für den reinen $E2$-Übergang von 550 keV ergibt die Theorie 34% Anisotropie, wie auch von McGowan und Stelson[17]) gemessen wurde. Dagegen haben wir 36% gemessen, während Goldburg und Williamson[16]) mit 25% bei ebenfalls 4 MeV und Cook et al.[11]) bei 4,4 MeV Protonenenergie mit 21% tiefere Anisotropien bekommen haben.

Die $E2$-Beimischung für den nicht isoliert beobachtbaren 270-keV-Übergang wurde einerseits mit Hilfe der Beziehung (39) und andererseits unter Annahme des theoretischen Verhältnisses $B_3\,(M1)/B_1\,(M1)$ von 1,35 mit Hilfe der Beziehung (36) aus $B_3\,(E2)_d$ und $B_1\,(M1)_d$ berechnet. Innerhalb der Fehlergrenzen liefern beide Methoden dasselbe Ergebnis (siehe Tab. XII); dagegen ergibt das Verzweigungsverhältnis $\lambda_2 = 19$ mit der Beziehung (38) einen viel zu grossen Wert bei dem anomalen Verhältnis der Gammaenergien und einen zu kleinen, aber vernünftigeren Wert für das theoretische Energieverhältnis.

Ta^{181}

Das Tantal ist schon von sehr vielen Experimentatoren untersucht worden, und das durch elektrische Anregung erhältliche Rotationsspektrum ist gut bekannt[12])[21])[22])[23])[24])[25]). Ebenso sind für die Gammalinien

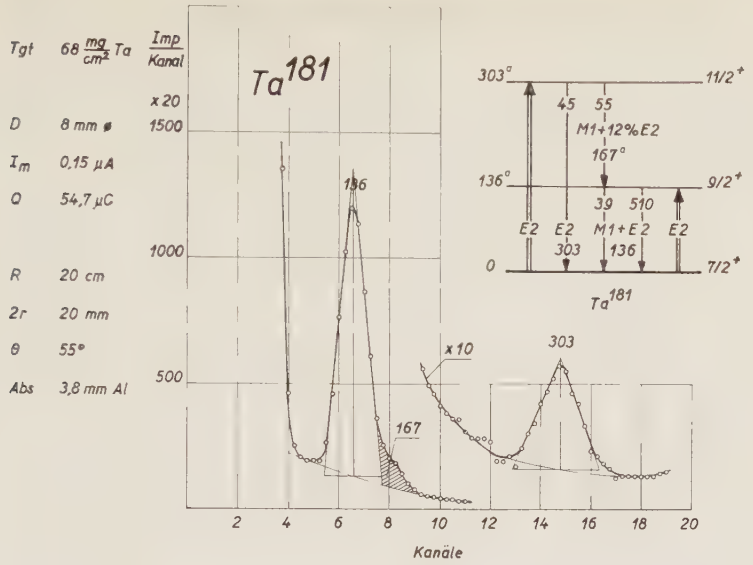


Fig. 10

Gammaspektrum bei Coulomb-Anregung von Ta^{181}

[a] Gammaenergien aus HEYDENBURG and TEMMER, Phys. Rev. *104*, 981 (1956)

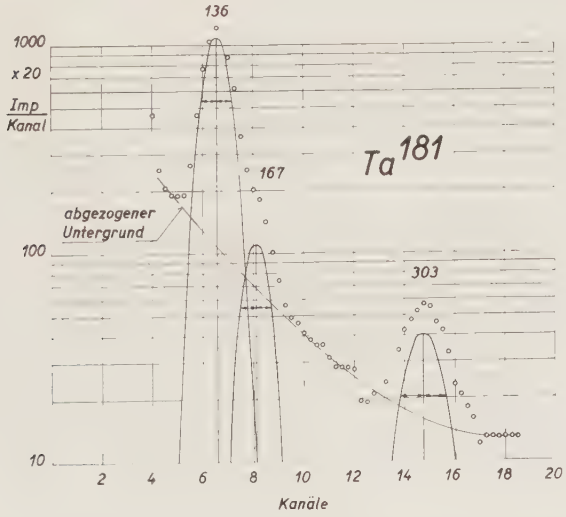


Fig. 11

Logarithmisch aufgetragenes Gammaspektrum bei Coulomb-Anregung von Ta^{181} (siehe Abschnitt II. 4.)

von 136, 167 und 303 keV Winkelverteilungsmessungen gemacht worden[16)17)26)].

Am Tantal lässt sich wohl am besten ein Vergleich der Messergebnisse verschiedener Experimentatoren und eine Beurteilung der absoluten Messgenauigkeit vornehmen. In Tabelle VI sind sowohl unsere Messungen

Tabelle VI

Vergleich verschiedener Arbeiten über Coulomb-Anregung von Ta^{181}
(Die εB-Werte sind aus den $B(E2)$ errechnet)

	Vorl. Arbeit		Stelson [12)]	Goldring [21)]	Davis [22)]	Heydenb. [23)]	Wolicki [24)]	Bernstein [25)]
	dicke T.	dünneT.						
$\varepsilon_1 B_1(E2)_{ex}$	0,47	0,63	0,83[a]		0,59[a]	0,68[a]	0,60[a]	
$\varepsilon_2 B_2(E2)_{ex}$	0,069	0,086	0,13		0,12	0,054	0,114	
λ_2	0,82[b]	0,83[b]	0,6	0,574[c]	0,66	0,36	0,69	
α_1	1,86	1,86	2,09		2,09	2,1	1,93	1,7
α_2	0,08	0,08	0,08		0,079	0	0,083	
α_3	1,02	1,02	1,08		1,08	1,1	1,11	0,96
$B_1(E2)_{ex}$	1,24	1,65	2,62		1,83	2,10	1,74	1,9 [d]
$B_2(E2)_{ex}$	0,28	0,34	0,58		0,50	0,37	0,47	0,56[d]
B_2/B_1	0,23	0,20	0,22	0,22[d]	0,27	0,18	0,27	0,295

[a] berechnet unter der Annahme $\varepsilon_1 = 1/(1+\alpha_1)$;
[b] Huus et al.[14)] geben ebenfalls $\lambda_2 = 0{,}8$ an;
[c] aus Koinzidenzmessungen zwischen der 136 und 167 keV-Linie ermittelt;
[d] aus einer Messung der Konversionselektronen bestimmt.

einer dicken als auch einer dünnen Target von 14,4 mg/cm² zusammengestellt und mit anderen Arbeiten verglichen. Die um 20–40% höheren Anregungswahrscheinlichkeiten $\varepsilon B(E2)_{ex}$ der dünnen Target sind innerhalb der Fehlergrenzen mit den Ergebnissen anderer Arbeiten im Einklang. Für die Angabe der reduzierten Anregungswahrscheinlichkeiten $B(E2)_{ex}$ sind die totalen Konversionskoeffizienten und das Verzweigungsverhältnis λ_2 erforderlich; während die Konversionskoeffizienten sicher innerhalb $\pm$ 10% übereinstimmen, haftet dem Verzweigungsverhältnis $\lambda_2 = 0{,}6 \pm 0{,}2$ eine Unsicherheit von mehr als 30% an, die von der Unsicherheit in der Wahl des abzuziehenden Untergrundes herrührt. Damit ist auch die Genauigkeit für das Verhältnis der Anregungswahrscheinlichkeiten beschränkt, für das aus den verschiedenen Messungen sich der folgende wahrscheinlichste Wert angeben lässt:

$$B_2/B_1 = 0{,}24 \pm 0{,}04.$$

Für die Anregungswahrscheinlichkeiten ergibt die Mittelwertbildung:

$$B_1(E2)_{ex} = 1{,}85 \pm 0{,}20 \qquad B_2(E2)_{ex} = 0{,}44 \pm 0{,}10\ .$$

Die vorliegenden Winkelverteilungsmessungen für die 136- und 303-keV-Linien stimmen mit den früheren Ergebnissen überein[16)17)26)]. Dagegen ist für die 167-keV-Linie die Anisotropie von + 14% (Mischungsverhältnis $\delta_3^2 = 0{,}14 \pm 0{,}04$) gegenüber einer Winkelverteilung $W(\Theta) = 1 + 0{,}10\cos^2\Theta + 0{,}09\cos^4\Theta \approx 1 + 0{,}16\cos^2\Theta$ bei McGowan und Stelson[17)] zu vergleichen, die mit einem Winkelverteilungskoeffizienten von

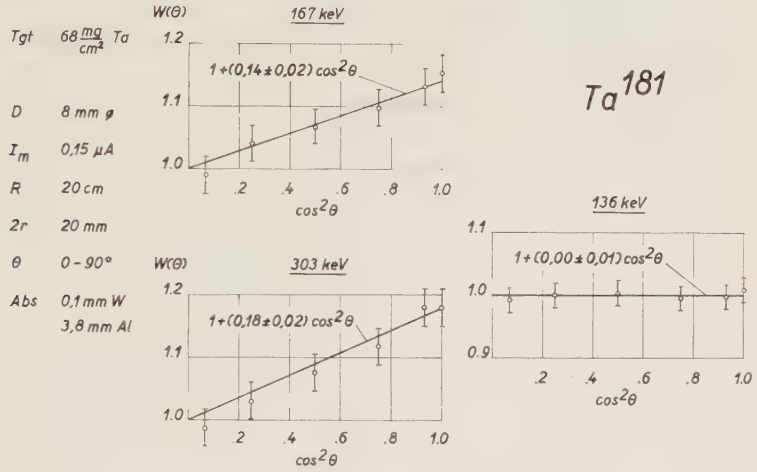


Fig. 12.
Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von Ta^{181}

$a_2^{(2)} = 0{,}53$ ein Mischungsverhältnis von $\delta_3^2 = 0{,}26$ bestimmt haben. Verwendet man jedoch einen neueren Wert von $a_2^{(2)} = 0{,}615$ nach Alder et al.[1)], so findet man ein Mischungsverhältnis von $\delta_3^2 = 0{,}19$. In Tabelle VII sind für den 136-keV-Übergang einige Mischungsverhältnisse zusammengestellt, die sich aus der Messung von Konversionselektronen[13)14)19)27)] und einer γ-γ-Korrelationsmessung[28)] zwischen dem 482-keV-$(5/2^+)$-, dem 136-keV-$(9/2^+)$-Niveau und dem Grundzustand des

Tabelle VII

Mischungsverhältnisse aus Messungen der Konversionselektronen und γ-γ-Korrelation für 136-keV-Linie im Ta^{181}

		Bernstein K/L[13)]	Huus K/L[14)]	McGowan α_K[19)]	Boehm α_K[27)]	Debrunner γ-γ-Korr.[28)]
Messung		6,3	6,5	1,05 ± 0,15	1,2	
Theorie	$M1$	7,1		1,84	1,35	
	$E2$	1,0		0,47	0,47	
δ_1^2	$E2/M1$	0,075	0,14	0,25 ± 0,10	0,11	0,20

Ta^{181} bestimmen liessen. Die meisten Messungen sind innerhalb der Fehlergrenzen in Übereinstimmung und bestätigen das aus der Winkelverteilung bestimmte Mischungsverhältnis δ_3^2, das auch mit einem mittleren Verzweigungsverhältnis von $\lambda_2 = 0{,}6$ über Beziehung (38) im Einklang steht.

Lu^{175}

Während Coulomb-Anregungsexperimente an Lu^{175} schon von einigen Experimentatoren durchgeführt wurden[14)21)23)25)], lagen bisher noch keine Winkelverteilungsmessungen vor.

Tabelle VIII

Vergleich verschiedener Arbeiten über Coulomb-Anregung von Lu^{175} (Mischungsverhältnisse aus Verzweigungsverhältnissen λ_2*) und der Messung von Konversionselektronen**)

	Vorlieg. Arbeit	Huus [14)]	Goldring [21)]	Heydenburg [23)]	Bernstein [25)]	Hatch [29)]
λ_2	0,95		0,90	0,50		1,7
$B_1(E2)_{ex}$	2,4	3,2		2,5	2,86	
$B_2(E2)_{ex}$	0,45			0,78	0,75	
B_2/B_1	0,19		0,23	0,31	0,26	
$\delta_3^2(\lambda_2)$ *)	0,30		0,27	0,135		0,7
$\delta_1^2(\varepsilon_K)$**)		0,05			0,11	0,25
$\delta_3^2(\varepsilon_K)$**)					0,08	

Die Anregungswahrscheinlichkeiten $\varepsilon B(E2)_{ex}$ vorliegender Arbeit stehen im Einklang mit den Messungen von Heydenburg und Temmer[23)], welche allerdings für das Verzweigungsverhältnis λ_2 einen bedeutend kleineren Wert angeben, weshalb sie ein ziemlich grosses Verhältnis B_2/B_1 bekommen haben (siehe Tab. VIII).

Aus der Tabelle VIII ergeben sich folgende Mittelwerte für die Anregungswahrscheinlichkeiten und deren Verhältnis:

$$\begin{aligned} B_1(E2)_{ex} &= 2{,}8 \pm 0{,}3 \\ B_2(E2)_{ex} &= 0{,}7 \pm 0{,}2 \end{aligned} \qquad B_2/B_1 = 0{,}25 \pm 0{,}04\,.$$

Die Anisotropie des 140-keV-Überganges von + 17% ergibt für die beiden Kaskadenübergänge ein Mischungsverhältnis von $\delta_3^2 = \delta_1^2 = 0{,}22$, das durch eine neuere Messung der Konversionselektronen[29)] bestätigt wird und einigermassen mit dem Verzweigungsverhältnis zusammenpasst.

Mit einem magnetischen Moment im Grundzustand von $\mu_0 = +\,2{,}9$[30)] ergäbe sich in ungefährer Übereinstimmung mit Werten von Heydenburg und Temmer[23)] für die gyromagnetischen Faktoren $g_R = 0{,}53$ und

$g_K = 0{,}92$. Verwendet man dagegen für das magnetische Moment das Ergebnis $\mu_0 = +2{,}0$ einer neueren Messung von STEUDEL[31]), so erhält man die Werte $g_K = 0{,}30$ und $g_K = 0{,}66$, die besser in die Folge der u-g-Kerne Ta^{181}, Lu^{175}, Ho^{165} mit dem Spin $I_0 = 7/2$ passen (siehe Tab. XII).

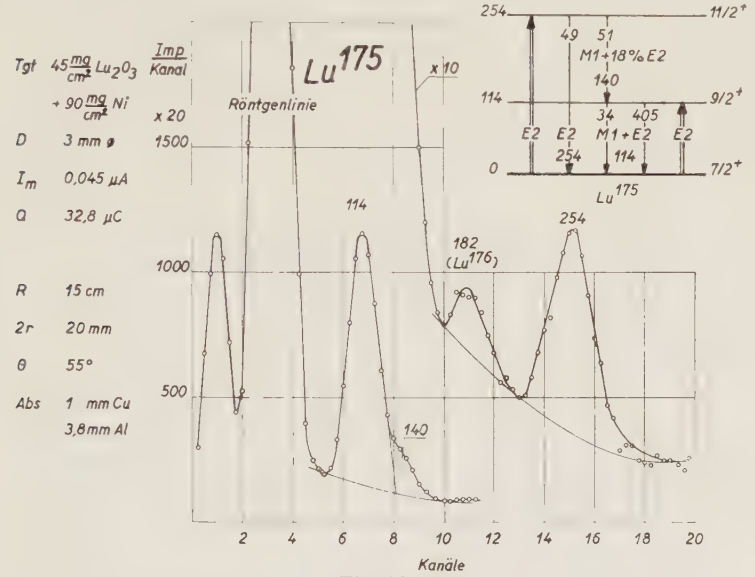


Fig. 13

Gammaspektrum bei Coulomb-Anregung von Lu^{175}

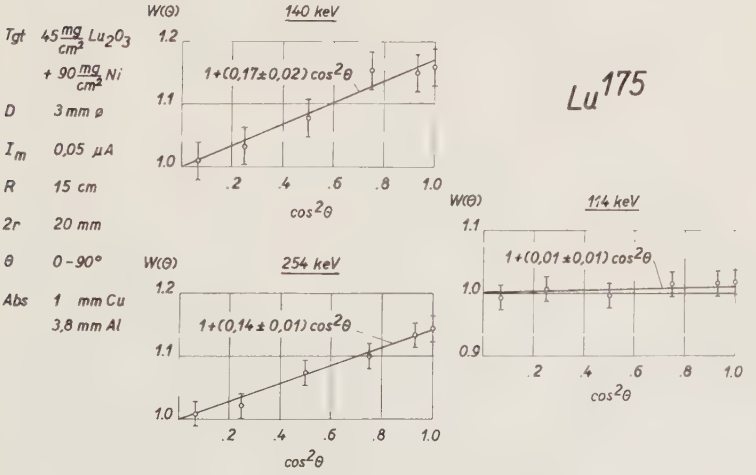


Fig. 14

Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von Lu^{175}

Tm^{169}

Coulomb-Anregungsexperimente an Thulium sind von HUUS et al.[14]) und HEYDENBURG und TEMMER[32]) gemacht worden, und Winkelverteilungsmessungen liegen keine vor.

Da das Tm^{169} im Grundzustand den Spin $I_0 = \frac{1}{2}$ besitzt, zeigt sein Rotationsspektrum eine starke Anomalie[29]). Die beiden Übergänge aus dem 2. Rotationsniveau von 110 und 118 keV lassen sich nicht getrennt beobachten. Praktisch wird nur der Kaskadenübergang von 110 keV registriert, weil das Verzweigungsverhältnis nur $\lambda_2 = 0{,}12$ beträgt[29]). Eine Messung ohne und mit einem charakteristischen Uranoxydabsorber

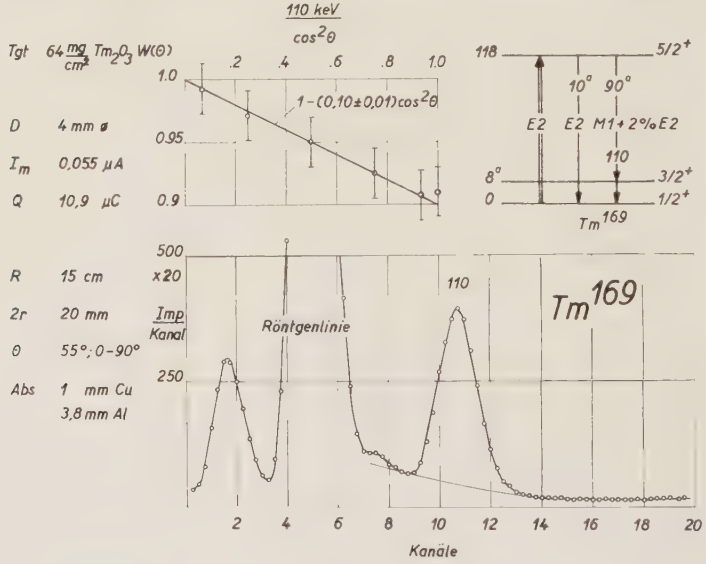


Fig. 15

Gammaspektrum und Gamma-Winkelverteilung bei Coulomb-Anregung von Tm^{169}
[a] 1. Rotationsniveau und Verzweigungsverhältnis aus HATCH et al., Phys. Rev. *140*, 745 (1956).

von 2 mm Dicke (K-Absorptionskante bei 116 keV, Absorptionsverhältnis für 118,2 und 109,8 keV beträgt 10) ergab keine wesentlich verschiedenen Gammaspektren, wodurch das angegebene Verzweigungsverhältnis auch bekräftigt wird. Vorliegende Anregungswahrscheinlichkeit für das 2. Rotationsniveau $B_2(E)_{ex} = 3{,}8$ stimmt mit einer Messung der Konversionselektronen von HUUS et al.[14]) überein.

Die Anisotropie von $-10 \pm 1\%$ der 110-keV-Linie ergibt einen $E2$-Mischungsanteil von nur $2 \pm 0{,}5\%$, was sowohl mit dem Verzweigungsverhältnis als auch mit einer von HATCH et al.[29]) angegebenen oberen Grenze von 3% gut verträglich ist.

Aus der $M1$-Übergangswahrscheinlichkeit $B_3(M1)_d = 0{,}15$ und unter der Annahme des theoretischen Wertes für $B_3(M1)_d/B_1\ (M1)_d = 1{,}20$ erhält man einen sehr gut mit dem Modell einer homogen geladenen Kernmaterie übereinstimmenden gyromagnetischen Faktor $g_R = 0{,}42$, wenn für das magnetische Moment des Grundzustandes $\mu_0 = -0{,}21$ eine Messung von LINDENBERGER[33]) benützt wird.

Ho^{165}

Das Holmium ist schon von verschiedenen Experimentatoren untersucht worden[14])[21])[23])[25]), jedoch ohne Zuhilfenahme von Winkelverteilungsmessungen.

Zu den Kernen Ta^{181} und Lu^{175} mit dem Spin $I_0 = 7/2$ kommt in der Reihe stark deformierter Kerne das Ho^{165} hinzu, dem man negative Parität zuschreibt, während die beiden ersteren positive Parität haben.

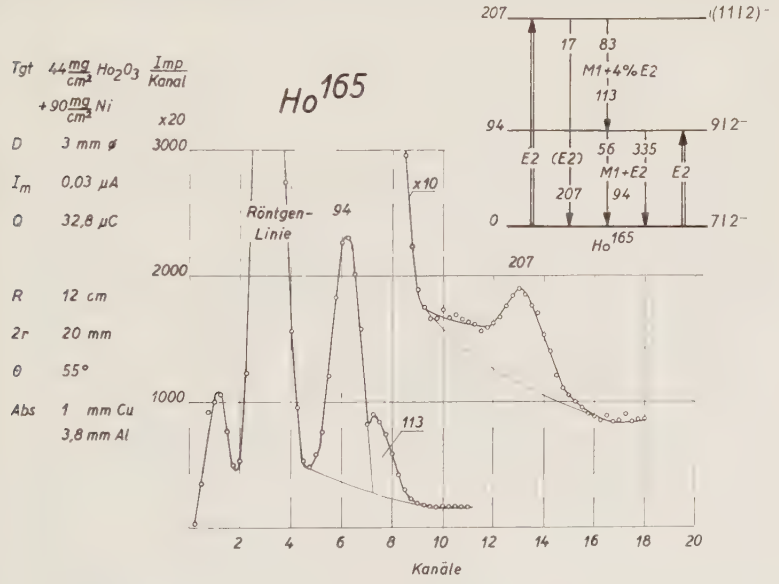


Fig. 16
Gammaspektrum bei Coulomb-Anregung von Ho^{165}

Alle drei Kerne haben ein ausgesprochenes Rotationsspektrum. Das Ho^{165} besitzt im Gegensatz zu Ta^{181} und Lu^{175} ein ziemlich kleineres Verzweigungsverhältnis für den 2. Rotationszustand und demnach eine $E2$-Beimischung von wenigen Prozenten für die beiden Kaskadenübergänge. Dies macht die Beobachtung des schwachen $E2$-Überganges zum Grundzustand schwierig, indem der von der Bremsstrahlung und den

Bleiblenden herrührende Untergrund die Gammalinie stark überwiegt (siehe Fig. 16). Daran scheiterte auch eine Messung der Winkelverteilung dieser Linie. Die Spinzuordnung 11/2 für das 2. Rotationsniveau darf deshalb noch nicht als völlig gesichert betrachtet werden, obwohl sie höchst wahrscheinlich ist. Aus gleichen Gründen ist auch die Bestimmung der Anregungsenergie ungenau. Während die vorliegende und die

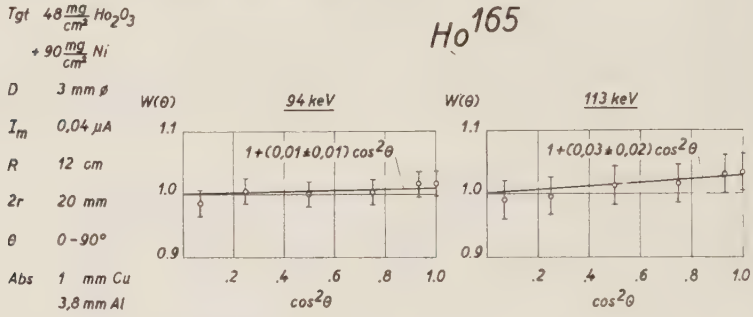


Fig. 17

Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von Ho^{165}

Messung der Gammastrahlung von Heydenburg und Temmer[23]) 207 bzw. 206 keV ergab, bestimmen Huus et al.[14]) und Bernstein und Lewis[25]) durch Beobachtung der Konversionselektronen 212 bzw. 218 keV. Messungen mit dem Kristallspektrometer ergaben für die Anregungsenergie des 1. Rotationsniveaus 94,8 keV[34]), wofür nach der Theorie das 2. Rotationsniveau eine Anregungsenergie von 211 keV bekommen müsste, was gerade dem Mittelwert der vier genannten Messungen entspricht.

Tabelle IX

Vergleich verschiedener Arbeiten über Coulomb-Anregung von Ho^{165}

	Vorlieg. Arbeit	Huus [14])	Goldring [21])	Heydenburg [23])	Bernstein [25])
λ_2	0,21		0,14	0,16	
$B_1(E2)_{ex}$	2,8	2,5		2,5	2,79
$B_2(E2)_{ex}$	0,7	0,76		0,52	0,71
B_2/B_1	0,25	0,3	0,20	0,21	0,25
$\delta_3^2(\lambda_2)$	0,05		0,035	0,039	
$\delta_1^2(e_K)$					0,044

Aus der Winkelverteilung der 113-keV-Linie findet man ein Mischungsverhältnis von $\delta_3^2 - 0{,}04 \pm 0{,}02$, was sowohl mit dem Verzweigungsverhältnis als auch mit einer Messung der Konversionselektronen von Bernstein und Lewis[25]) zusammenstimmt. In Tabelle IX sind die Re-

sultate verschiedener Arbeiten verglichen, woraus sich folgende Mittelwerte ausrechnen lassen:

$$B_1(E2)_{ex} = 2{,}65 \pm 0{,}15 \qquad B_2/B_1 = 0{,}25 \pm 0{,}04 \ .$$
$$B_2(E2)_{ex} = 0{,}66 \pm 0{,}1$$

Die drei Kerne Ta^{181}, Lu^{175} und Ho^{165} zeigen einen leicht zunehmenden gyromagnetischen Faktor von $\bar{g}_R = 0{,}29$, 0,30 und 0,33, was auf ihre gegenseitige Verwandtschaft hindeutet.

Tb^{159}

Das Terbium ist bisher auch ohne Zuhilfenahme von Winkelverteilungsmessungen untersucht worden[14)21)23)].

Der 59-keV-Übergang vom 1. Rotationsniveau fällt in die rechte Flanke der viel stärkeren Röntgenlinie und kann deshalb im Gammaspektrum (Fig. 18) nicht beobachtet werden. Da der Spin des Tb^{159}

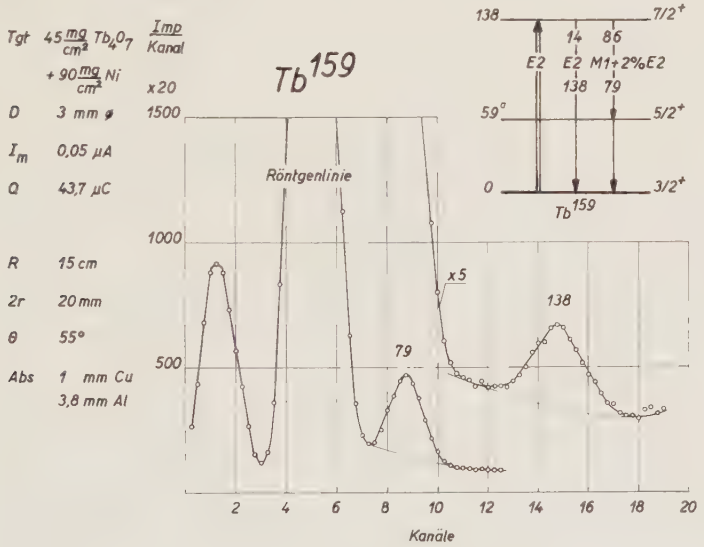


Fig. 18

Gammaspektrum bei Coulomb-Anregung von Tb^{159}
a Anregungsenergie aus Huus et al.,
Kgl. Danske Videnskab. Selskab Mat.-fys. Medd. *30*, Nr. 17.

$I_0 = 3/2$ ist, fällt der Kaskadenübergang von 79 keV günstiger als bei den Kernen mit dem Spin $I_0 = 7/2$ und gestattet eine genauere Bestimmung des Verzweigungsverhältnisses $\lambda_2 = 0{,}16$. Heydenburg und Temmer[23)] haben dafür $\lambda_2 = 0{,}13$ angegeben und ermitteln für das Tb^{159}

*

das grösste elektrische Quadrupolmoment in der Reihe dieser deformierten Kerne; in Übereinstimmung mit vorliegender Arbeit.

Die Winkelverteilungsmessungen bestätigen für die 138-keV-Linie mit 11% Anisotropie die Theorie und die Spinzuordnung $7/2^+$ für das 2. Rotationsniveau und ergeben ein mit dem Verzweigungsverhältnis und dem K/L-Verhältnis[14]) zusammenpassendes Mischungsverhältnis für den 79-keV-Übergang.

Für die Bestimmung der gyromagnetischen Faktoren muss das Mischungsverhältnis bekannt sein. Bei so kleinen Mischungsverhältnissen,

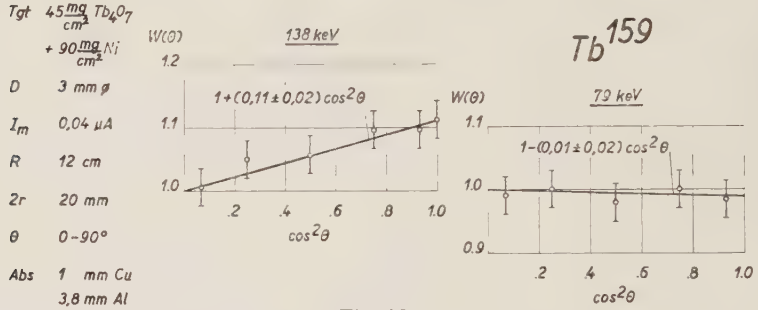


Fig. 19

Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von Tb^{155}

die aus einer nahezu isotropen Winkelverteilung bestimmt werden müssen, wie dies bei der 79-keV-Linie der Fall ist, ist die Genauigkeit sehr gering. Aus diesem Grund geben HEYDENBURG und TEMMER[23]) mit $\delta_3^2 = 0{,}013$ für den gyromagnetischen Faktor $g_R = 0{,}01$ ($\delta > 0$) an, während wir mit $\delta_3^2 = 0{,}02$ auf den Wert $g_R = 0{,}25$ kommen, der zwar vernünftiger erscheint, aber doch sehr unsicher bleiben muss.

$Eu^{151, 153}$

Die mit angereicherten Isotopen gemachten, neueren Messungen[23])[35]) haben gezeigt, dass sowohl die 195-keV-Linie als auch die 112-keV-Linie des Eu^{153}, das noch ein ausgesprochenes Rotationsspektrum besitzt, mit einem 193-keV- bzw. 113-keV-Übergang des Eu^{151} (siehe Niveauschema bei CLASS und MEYER[35])) für das geringe Auflösungsvermögen eines Szintillationszählers zusammenfallen.

Da uns noch keine angereicherten Isotopen zur Verfügung standen, haben wir, wie andere Autoren[14])[21])[25]), eine Messung mit natürlichem Europiumoxyd durchgeführt, was natürlich deren Bedeutung einschränkt. Um aus den $\varepsilon B(E2)_{ex}$-Werten für die 112- und 195-keV-Linien die Anregungswahrscheinlichkeit für das 2. Rotationsniveau des Eu^{153} zu bestimmen, wurde das von HEYDENBURG und TEMMER[23]) angegebene Ver-

zweigungsverhältnis $\lambda_2 = 1{,}62$ benützt. Hierbei wurde allerdings der schwache Beitrag des 113-keV-Übergangs im Eu^{151} vernachlässigt.

Für das Eu^{151} können wir nur eine Anregungswahrscheinlichkeit des relativ stark angeregten 2. Niveaus (bzw. 3. Niveaus) von 306 keV angeben. Der $\varepsilon_2 B_2(E2)_{ex}$-Wert ist mehr als doppelt so gross als derjenige von HEYDENBURG und TEMMER[23]). Für die Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeit wurde das Verzweigungsverhältnis letzterer Arbeit

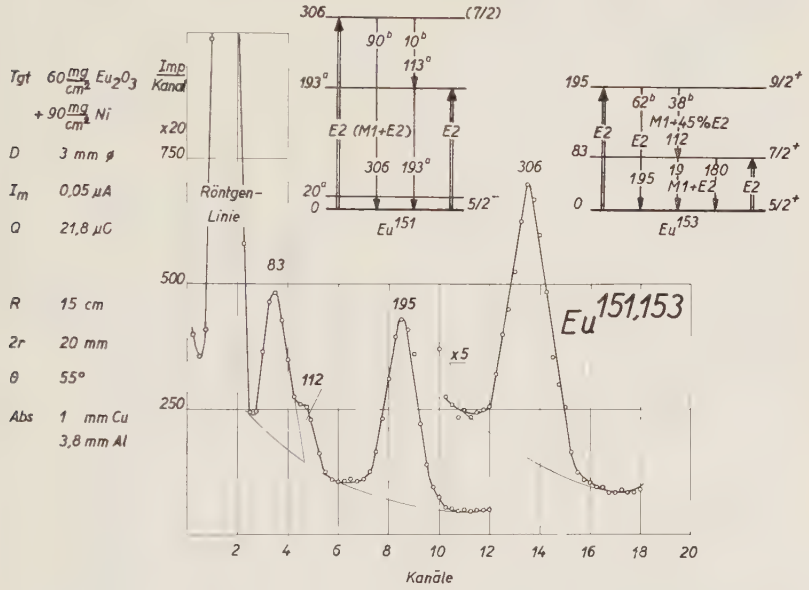


Fig. 20

Gammaspektrum bei Coulomb-Anregung von Eu^{151} und Eu^{153}
a Niveauschema aus CLASS und MEYER, Nuclear Physics *3*, 656 (1957).
b Verzweigungsverhältnisse aus HEYDENBURG und TEMMER, Phys. Rev. *104*, 981 (1956).

entnommen und für die 113-keV-Linie der totale $M1$-Konversionskoeffizient ($\alpha_3 = 1{,}4$) verwendet. Wenn man für das 306-keV-Niveau die aus der nahezu isotropen Winkelverteilung nahegelegte Spinzuordnung 7/2 annimmt und die Gültigkeit der Beziehung (42) für das elektrische Quadrupolmoment voraussetzt, so ergibt sich mit $Q_0 = 3{,}8$ ein mit dem gemessenen Verhältnis der Quadrupolmomente von Eu^{153} und Eu^{151} von 2,1[30]) einigermassen zusammenstimmendes Ergebnis. Demgegenüber würde ein Spin von 9/2 einen stark anisotropen $E2$-Übergang fordern und ein zu grosses Quadrupolmoment von 6,5 ergeben.

Eine Messung der Winkelverteilung der 83-keV-Linie scheiterte, weil die von den Bleiblenden herrührende Röntgenstrahlung einen unkon-

trollierbaren Untergrund besonders für kleine Winkel $\Theta \leqq 30°$ erzeugt. Die Anisotropie dürfte nicht grösser als etwa 2% sein, so dass ohnehin eine Bestimmung des Mischungsverhältnisses wie bei den Kernen mit dem Spin $I_0 = 7/2$ ausgeschlossen wäre. Für den 195-keV-$E2$-Übergang wurde die theoretisch vorausgesagte Anisotropie gemessen, obwohl auch der 193-keV-Übergang des Eu^{151} mitbeobachtet wird. Aus den Gammaspektren von HEYDENBURG und TEMMER[23]) ist die Intensität des letzteren allerdings höchstens $\frac{1}{3}$ des ersteren Übergangs, so dass sich erst eine

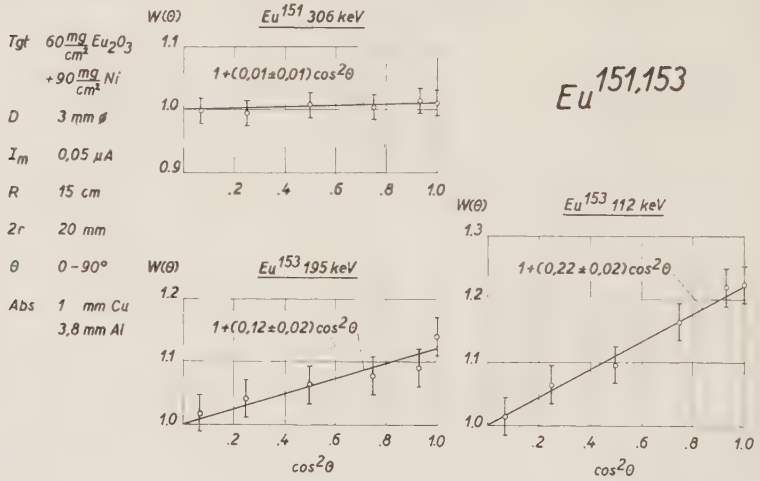


Fig. 21

Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von $Eu^{151, 153}$

Anisotropie von etwa 10% der 193-keV-Linie störend bemerkbar machen würde. Ähnliche Verhältnisse bestehen für den 112-keV-Kaskadenübergang im Eu^{153}, für den die Anisotropie von $22 \pm 2\%$ ein Mischungsverhältnis von $\delta_3^2 = 0{,}82 \pm 0{,}4$ ergibt.

Tabelle X

Vergleich verschiedener Arbeiten über Coulomb-Anregung von Eu^{153}
[a] berechnet mit einem Verzweigungsverhältnis von $\lambda_2 = 1{,}62$.

	Vorlieg. Arbeit	HUUS [14])	GOLDRING [21])	HEYDENBURG [23])	BERNSTEIN [26])	CLASS [35])
λ_2			1,3	1,62		1,44
$B_1(E2)_{ex}$	2,3	1,6		2,8	2,77	(2,1)
$B_2(E2)_{ex}$	(0,6)[a]	~ 0,6		0,83	0,90	0,53
B_2/B_1	(0,26)	~ 0,37	0,25	0,30	0,32	(0,25)
$\delta_3^2(\lambda_2)$			0,26	0,38		0,32
$\delta_1^2(e_K)$		~ 2,5			0,48	(3,3)
$\delta_3^2(e_K)$					0,08	2

In Tabelle X sind diese Ergebnisse mit denjenigen anderer Arbeiten verglichen. Für die Anregungswahrscheinlichkeiten und deren Verhältnis lassen sich folgende Mittelwerte ausrechnen:

$$B_1(E2)_{ex} = 2{,}3 \pm 0{,}5 \qquad B_2(E2)_{ex} = 0{,}7 \pm 0{,}2 \qquad B_2/B_1 = 0{,}30 \pm 0{,}4 \ .$$

Ein Vergleich der in verschiedenen Arbeiten angegebenen Mischungsverhältnisse zeigt, dass dieselben noch als recht unsicher hingenommen werden müssen. Winkelverteilungsmessungen mit angereicherten Isotopen sollten noch durchgeführt werden. Immerhin kommen die gyromagnetischen Faktoren mit den aus vorliegenden Winkelverteilungen bestimmten Mischungsverhältnissen ganz vernünftig heraus (siehe Tabelle XII).

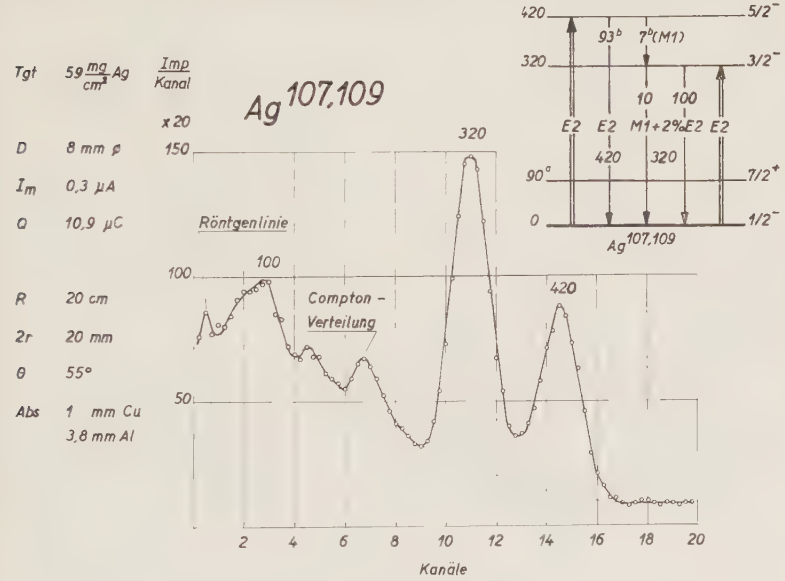


Fig. 22

Gammaspektrum bei Coulomb-Anregung von $Ag^{107, 109}$

[a] Niveau aus Huus und Lunden, Phil. Mag. *45*, 966 (1954).

[b] Verzweigungsverhältnis aus Stelson und McGowan, Phys. Rev. *99*, 112 (1955).

$Ag^{107, 109}$

Das Silber ist schon verschiedentlich durch Coulomb-Anregung untersucht worden, und zwar sowohl mit natürlichem Silber[12)14)17)36)37)] als auch mit angereicherten Silberisotopen[38)39)40)]. Auch sind Winkelverteilungsmessungen schon durchgeführt worden[17)].

Die im natürlichen Silber fast gleich häufigen Isotopen Ag^{107} und Ag^{109} haben beide im Grundzustand den Spin $I_0 = \frac{1}{2}$ und fast gleiche, anomale Rotationsspektren[38)39)40)] mit einem Entkopplungsparameter

von $a = +0{,}68$. Wir haben im natürlichen Silber für die Anregungsenergien 320 und 420 keV bestimmt. Der sehr schwache Kaskadenübergang von 100 keV ist im Gammaspektrum (Fig. 22) der Comptonverteilung der beiden höheren Gammalinien überlagert und deshalb nicht ausgewertet worden. Für das Verzweigungsverhältnis wurde ein von McGowan und Stelson[12]) angegebener Wert von $\lambda_2 = 14$ benützt, mit welchem sich fast die gleichen Anregungswahrscheinlichkeiten ergeben wie bei diesen Autoren. Sie sind unter der Annahme berechnet, dass die beiden Silberisotopen durch einen Kern vom Atomgewicht 108 ersetzt werden dürfen. Die mit angereicherten Isotopen gemachten Messungen haben niedrigere Werte ergeben (siehe Tab. XI).

Tabelle XI

Vergleich verschiedener Arbeiten über Coulomb-Anregung von Ag

	Vorl. Arbeit nat. Ag	Stelson[12]) nat. Ag	Huus[14]) Ag^{107}	Huus[14]) Ag^{109}	Heydenburg[38]) Ag^{107}	Heydenburg[38]) Ag^{109}	Fagg, Wolicki[39]) Ag^{107}	Fagg, Wolicki[39]) Ag^{109}
$B_1(E2)_{ex}$	0,26	0,225	0,12	0,13	0,12	0,13	0,16	0,18
$B_2(E2)_{ex}$	0,35	0,36			0,21	0,23	0,23	0,31
B_2/B_1	1,35	1,6			1,75	1,75	1,45	1,7

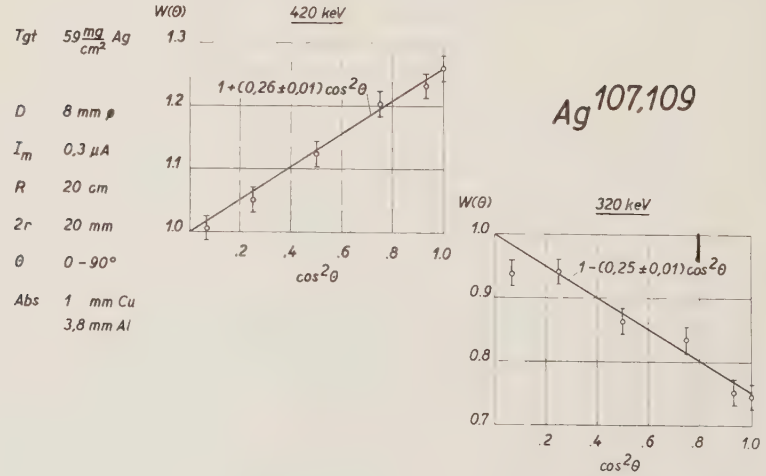


Fig. 23

Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von Ag nat.

McGowan und Stelson[17]) haben für die 320-keV-Linie ein Mischungsverhältnis von $\delta_1^2 = 0{,}036$ bestimmt, während die vorliegende Winkelverteilung $\delta_1^2 = 0{,}02 \pm 0{,}005$ ergeben hat. Rechnet man in obiger Arbeit

mit einem Winkelverteilungskoeffizienten von $a_2^{(2)} = 0{,}78$ für 2,5-MeV-Protonen (nach ALDER et al.[1])) statt mit 0,72, so bekommt man fast dasselbe Mischungsverhältnis wie aus unserer Messung. Es steht auch in Übereinstimmung mit Polarisationsmessungen von STELSON und MCGOWAN[37]), die hier $\delta_1^2 = 0{,}03$ erhalten haben. Für den $E2$-Übergang von 420 keV ist die gemessene Anisotropie etwas kleiner als die theoretisch erwartete. Demgegenüber hatte die bei 2,5 MeV Protonenenergie gemessene Winkelverteilung von MCGOWAN und STELSON[17]) einen Winkelverteilungskoeffizienten von $a_2^{(2)} = 0{,}88$ ergeben, der mit dem theoretischen Wert von 0,87 gut übereinstimmt.

Zur Berechnung der gyromagnetischen Faktoren stehen nur das magnetische Moment des Grundzustandes $\mu_0 = -0{,}12$[30]) und eine $M1$-Übergangswahrscheinlichkeit $B_1(M1)_d$ 0,45 zur Verfügung, was für einen Kern mit dem Spin $I_0 = \frac{1}{2}$ nicht ausreicht. Unter der Annahme des theoretischen gyromagnetischen Faktors $g_R = z/A = 0{,}43$ wird in Gl. (32) der Entkopplungsparameter $b_0 = 0{,}24$. Damit ergibt sich für die $M1$-Übergangswahrscheinlichkeit der 100-keV-Linie $B_3(M1)_d$ 0,2 und mit der $E2$-Übergangswahrscheinlichkeit $B_3(E2)_d = 0{,}033$ nach Gl. (36) ein Mischungsverhältnis von $\delta_3^2 = 10^{-3}$. Wie schon STELSON und MCGOWAN[12]) erwähnt haben, handelt es sich um einen reinen $M1$-Übergang. Dieses Mischungsverhältnis kann man einerseits mit demjenigen vergleichen, das sich aus dem Verzweigungsverhältnis ergibt ($\delta_3^2 = 3 \cdot 10^{-3}$) und andererseits über Gl. (39) mit dem Mischungsverhältnis der 320-keV-Linie $\delta_1^2 = 0{,}02$ ($\delta_1^2/\delta_3^2 = 43$, woraus $\delta_3^2 = \frac{1}{2} \cdot 10^{-3}$). Da alle diese Mischungsverhältnisse von gleicher Grössenordnung sind, darf man die Annahme $g_R = z/A = 0{,}43$ bestehen lassen und dies als ein weiteres Argument für den von TEMMER und HEYDENBURG[40]) behaupteten Rotationscharakter dieser beiden Niveaus der Silberisotopen ansehen.

III. 2. *Zusammenfassung der Messergebnisse*

In Tabelle XII sind die Messergebnisse zusammengestellt und zur Berechnung der für deformierte Kerne charakteristischen Grössen benützt worden. Da alle Angaben zur Verfügung stehen, lassen sich auch die wirklichen Lebensdauern τ der beobachteten Rotationsniveaus nach Gl. (29) und (30) berechnen. Die Lebensdauern der meisten Rotationsniveaus bewegen sich zwischen 10 und 100 $\mu\mu$s. Einzig das Eu^{153} besitzt zwei Rotationszustände mit wesentlich grösserer Lebensdauer, was sich durch die ungewöhnlich hohen $E2$-Beimischungen in den beiden Kaskadenübergängen äussert. Im Au^{197} und $Ag^{107, 109}$, die relativ hohe Anregungsenergien haben, sind auch je eine kürzere Lebensdauer errechnet worden.

Tabelle XII

1 Kern	2 i	3 E_γ keV	4 $\frac{\hbar^2}{2\Im}$ keV	5 $\varepsilon B(E2)_{ex}$ $e^2 \cdot 10^{-48}$ cm^4	6 λ	7 α	8 $B(E2)_{ex}$ $e^2 \cdot 10^{-48}$ cm^4	9 B_2/B_1	10 $B(E2)_d$ $e^2 \cdot 10^{-48}$ cm^4	11 Q_0 10^{-24} cm^2	12 β
$_{79}Au^{197}_{118}$	1	280	56	0,15	49	0,40	0,20	1,15	0,13	2,0	0,08
dicke T.	2	550	46	0,21	19	0,022	0,23	[0,56]	0,12	2,8	
	3	270				0,41			0,17		
Au^{197}	3	190		0,025	0	1,2	0,055				
dünne T.	1	280		0,185	28	0,40	0,24	1,3	0,16	2,2	
	2	550		0,29	19	0,022	0,32	[0,56]	0,16	3,3	
	3	270				0,41			0,24		
$_{73}Ta^{181}_{108}$	1	136[a]	15	0,47	10	1,86	1,24	0,23	1,0	5,4	0,20
dicke T.	2	303[a]	15	0,069	0,82	0,08	0,28	[0,26]	0,19	5,1	
	3	167[a]		0,084		1,02			0,87		
Ta^{181}	1	136[a]		0,63	9,8	1,86	1,65	0,20	1,32	6,2	
dünne T.	2	303[a]		0,086	0,83	0,08	0,34	[0,26]	0,23	5,6	
	3	167[a]		0,10		1,02			1,1		
$_{71}Lu^{175}_{104}$	1	114	13	0,72	8,6	2,66	2,4	0,19	1,9	7,5	0,28
	2	254	13	0,12	0,95	0,13	0,45	[0,26]	0,3	6,4	
	3	140		0,13		1,4			1,4		
$_{71}Lu^{176}_{105}$		182		0,72							
$_{69}Tm^{169}_{100}$	2	118[b]	12		0,12[b]	1,9	3,8	[1,50]	1,3	8,0	0,33
	3	110		0,96		2,6			0,37		
$_{67}Ho^{165}_{98}$	1	94	10,5	0,77	4,7	3,16	2,8	0,25	2,2	8,0	
	2	207	10,4	0,048	0,21	0,24	0,70	[0,26]	0,46	8,0	0,35
	3	113		0,23		1,79			2,2		
$_{65}Tb^{159}_{94}$	2	138	11,5	0,051	0,16	0,94	1,9	[0,56]	0,95	8,1	0,38
	3	79		0,32		4,54			1,4		
$_{63}Eu^{153}_{90}$	1	83	12	0,51	5,2	4,12	2,3	(0,26)	1,7	7,0	
	2	195	12	(0,21)	1,6[c]	0,26	(0,6)	[0,35]	(0,36)	(6,0)	0,31
	3	112		0,13		1,56			(1,1)		
$_{63}Eu^{151}_{88}$	2	306	(44)	0,51	9,2[c]	0,08	(0,68)		(0,52)	(3,8)	(0,19)
$_{47}Ag^{107,109}_{60,62}$	1	320	64	0,28	15,6	0,02	0,26	1,35	0,13	2,5	
	2	420	63	0,31	14[d]	0,011	0,35	[1,50]	0,12	2,4	0,20
	3	100							0,033		

Tabelle XII

13 β_2 %	14 sign δ, $\delta^2(\beta_2)$ $E2/M1$	15 $\delta_5^2(\lambda_2)$ $E2/M1$	16 e % $E2$	17 $B(M1)$ $\left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2$	18 μ_0 $\frac{e\hbar}{2Mc}$	19 g_R	20 g_K	21 τ $\mu\mu s$
-14 ± 2 $+36\pm1$	$-0{,}11\pm0{,}06$ $(0{,}05)^{k}$	$\frac{\delta_1^2}{\delta_5^2}=2{,}3$ 4,3 $(0{,}02)^{n}$	10 100 $(7)^{p}$ 11^{g}	0,09 $(0{,}12)^{m}$	$+0{,}19^{e}$	0,61	$-0{,}19$	25 7,5
			10 100 $(8)^{p}$	0,11 $(0{,}15)^{m}$		0,66	$-0{,}22$	21 5,3
0 ± 1 $+18\pm2$ $+14\pm2$	$+0{,}14\pm0{,}04$	0,24	(12) 100 12 (12) 100 12	0,09 0,12 0,12 0,15	$+2{,}1^{e}$	0,28 0,30 0,23 0,26	0,70 0,69 0,71 0,69	73 34 56 27
$+1\pm1$ $+14\pm1$ $+17\pm2$	$+0{,}22\pm0{,}04$	0,30	(18) 100 18	0,08 0,09	$+2{,}0^{f}$ $+2{,}8^{f}$	0,27 0,32	0,66 0,65	110 60
-10 ± 1	$-0{,}02\pm0{,}005$	0,025	(100) 2	0,15	$-0{,}21^{e}$	$(0{,}42)^{h}$	$(-2{,}11)$	70
$+1\pm1$ [+11] $+3\pm2$	$+0{,}04\pm0{,}02$	0,05	(4) (100) 4	0,33 0,48	$+3{,}3^{e}$	0,32 0,34	1,12 1,12	48 27
$+11\pm2$ -1 ± 2	$+0{,}02\pm0{,}01$	0,016	100 2	0,3	$+1{,}5^{e}$	0,25	1,49	62
$+12\pm2$ $+22\pm2$	$+0{,}82\pm0{,}4$	0,40	(43) 100 45	0,011 0,012	$+1{,}5^{e}$	0,47 0,49	0,65 0,65	10^3 340
$+1\pm1$	$+(0{,}06)$		(6)	(0,55)	$+3{,}4^{e}$	0,42	1,74	
-25 ± 1 $+26\pm1$	$-0{,}02\pm0{,}005$ $(1/2\cdot10^{-3})^{k}$	$\frac{\delta_1^2}{\delta_5^2}=43$ $3\cdot10^{-3}$	2 100 $(0{,}1)^{l}$	0,45 $(0{,}2)^{l}$	$-0{,}12^{e}$	$(0{,}43)^{l}$	$(-3{,}42)$	3,6 40

Tabelle XII

Zusammenfassung der Messergebnisse und Berechnungen charakteristischer Grössen aus Coulomb-Anregungs- und Gammawinkelverteilungsmessungen an einigen deformierten *u–g*-Kernen (Untersuchung mit 4,05-MeV-Protonen)

Erläuterung der Kolonnen:

1 Targetkern.
2 Bezeichnung des beobachteten Gammaübergangs (siehe Fig. 7).
3 Gammaenergie in keV (Genauigkeit $\pm$ 2%): E_γ.
4 $\hbar^2/2\,\mathfrak{J}$ aus den Anregungsenergien mit den Gl. (4) bis (6) berechnet.
5 Anregungswahrscheinlichkeit $\varepsilon B(E2)_{ex}$ aus Gl. (51).
6 Gamma-Intensitätsverhältnis $\lambda_1 = f_1/f_3$ (siehe Fig. 7).
Verzweigungsverhältnis $\lambda_2 = f_2/f_3$
7 Totaler Konversionskoeffizient (Interpolation der Werte von Sliv[10]) und Rose, *E2*-Beimischung *e* aus Kolonne 16): α.
8 Reduzierte Anregungswahrscheinlichkeit $B(E2)_{ex}$ (Absolute Genauigkeit $\pm$ 50%, relative Genauigkeit $\pm$ 20%).
9 Verhältnis der Anregungswahrscheinlichkeiten B_2/B_1 (Theoretische Werte des kollektiven Kernmodells in eckigen Klammern).
10 *E2*-Zerfallswahrscheinlichkeit nach Tabelle II berechnet: $B(E2)_d$.
11 Elektrisches Quadrupolmoment Q_0 nach Tabelle III berechnet.
12 Mittlerer Deformationsparameter β nach Gl. (48) berechnet.
13 Anisotropie β_2 aus der Gammawinkelverteilung nach Gl. (58) ermittelt.
14 Vorzeichen und Betrag des *E2 M1*-Mischungsverhältnisses aus β_2: $\delta^2(\beta_2)$.
15 Mischungsverhältnis aus Verzweigungsverhältnis λ_2 nach Gl. (38): $\delta_2{}^3(\lambda_2)$.
16 *E2*-Beimischung aus Winkelverteilungsmessung: *e*.
17 *M1*-Zerfallswahrscheinlichkeit $B(M1)_d$ aus $B(E2)_d$ (Kolonne 10) nach Gl. (36).
18 Magnetisches Moment μ_0 des Grundzustandes für die Berechnung der gyromagnetischen Faktoren g_R und g_K.
19 Gyromagnetischer Faktor g_R für Rotationsbewegung aus $B(M1)_d$ nach Gl. (44).
20 Gyromagnetischer Faktor g_K für innere Nukleonenbewegungen nach Gl. (45).
21 Lebensdauer τ des Rotationszustandes nach Gl. (29) und (30) und mit *E2*-Beimischung *e* (Kolonne 16) berechnet.

Mutmassliche Angaben in runden Klammern, theoretische Werte in eckigen Klammern.

Bemerkungen zu Tabelle XII:

[a] Gammaenergien aus Heydenburg und Temmer, Phys. Rev. *104*, 981 (1956).
[b] Gammaenergie und Verzweigungsverhältnis aus Hatch et al., Phys. Rev. *104*, 745 (1956).
[c] Verzweigungsverhältnisse aus Heydenburg und Temmer, Phys. Rev. *104*, 981 (1956).
[d] Verzweigungsverhältnis aus Stelson und McGowan, Phys. Rev. *99*, 112 (1955).
[e] Magnetische Momente aus H. Kopfermann, Kernmomente (1956).
[f] Magnetische Momente aus Steudel, Naturwiss. *44*, 371 (1957).
[g] *E2*-Beimischung aus Joly et al., Helv. Phys. Acta *28*, 403 (1955), siehe auch Diskussion der Messergebnisse.
[h] Berechnet unter der Annahme $B_3(M1)/B_1(M1) = 1{,}20$, woraus $b_0 = 0$.
[i] Berechnet unter der Annahme $g_R = z/A = 0{,}43$, woraus $b_0 = 0{,}24$.
[k] Berechnet mit Hilfe des Verhältnisses $\delta_1{}^2/\delta_3{}^2 = 43$ nach Gl. (39).
[l] Berechnet unter der Annahme $B_3(M1)/B_1(M1) = 1{,}35$.
[m] Berechnet nach Gl. (38) mit dem theoretischen Energieverhältnis aus Gl. (3).
[n] Berechnet nach Gl. (36) aus $B_3(M1)_d$ und $B_3(E2)_d$.

Die für das Eu^{151} in runden Klammern angegebenen Grössen sind unter der Annahme ermittelt, dass das 306-keV-Niveau den Spin 7/2 habe und dass die Beziehungen für das kollektive Kernmodell dafür auch Gültigkeit haben.

In Fig. 24 sind über der geraden Neutronenzahl N dieser Kerne die elektrischen Quadrupolmomente Q_0, die Deformationsparameter β und eine das Trägheitsmoment $\Im$ enthaltende Grösse $\hbar^2/2\,\Im$ aufgetragen. In den Fällen, wo die Anregungswahrscheinlichkeit beider Rotationsniveaus ermittelt werden konnte, wurden jeweils Mittelwerte genommen. Der Bereich stark deformierter Kerne mit Deformationen zwischen $\beta = 0{,}2$ und 0,4 und Quadrupolmomenten zwischen $Q_0 = 5$ und $8 \cdot 10^{-24}$ Quadratzentimeter erstreckt sich von 90–110 Neutronen. Der allgemeine Verlauf und die absoluten Werte dieser Grössen bewegen sich innerhalb der schon von früheren Arbeiten gegebenen Darstellungen[1)14)41)].

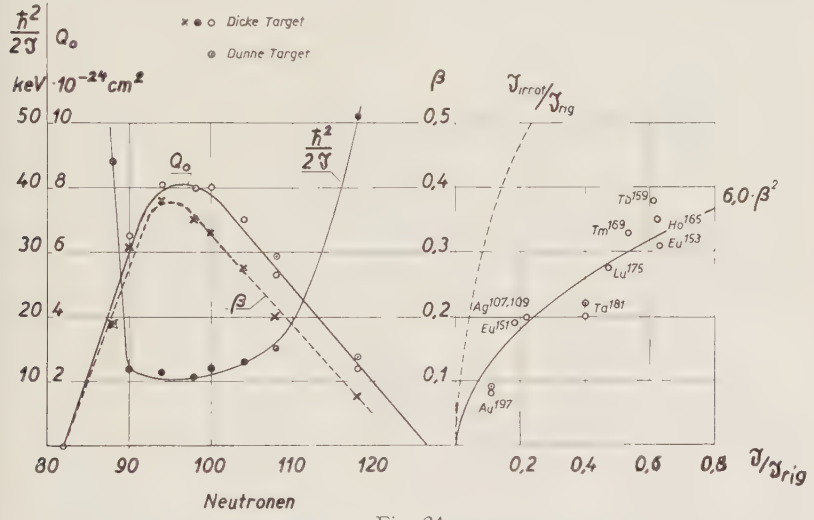


Fig. 24

Elektrische Quadrupolmomente Q_0, Deformationsparameter β und Trägheitsmomente $\Im$ einiger deformierter u–g-Kerne aus Coulomb-Anregungsexperimenten mit 4,05-MeV-Protonen.

Weiter sind für die untersuchten Kerne die Verhältnisse der gemessenen und für einen starren Kern berechneten Trägheitsmomente $\Im/\Im_{\text{rig}}$ über dem Deformationsparameter β aufgetragen. Die Trägheitsmomente sind alle etwa 5–8mal grösser als das Trägheitsmoment $\Im_{\text{irrot}}$ für eine umlaufende Welle eines Flüssigkeitstropfens, die den Tropfen um $\Delta R = 1{,}06 \cdot R_0\beta$ deformiert (siehe Gl. (46) und (50)). Die beobachteten Trägheitsmomente scheinen sich grob wie folgt annähern zu lassen:

$$\Im \approx 6{,}0\,\beta^2 \cdot \Im_{\text{rig}} = 2{,}4\,AMR_0^2\,\beta^2\,(1 + 0{,}31\,\beta)\,. \tag{60}$$

Allerdings könnte für Kerne von noch grösserer Deformation diese Näherung nicht mehr richtig sein, weil das Trägheitsmoment eines starren Kerns nicht überschritten werden dürfte. Die Trägheitsmomente für

Kerne mit einem unpaarigen Nukleon sind grösser als diejenigen für g–g-Kerne[1])[14]). Diese Tatsache wird damit erklärt, dass in Kernen mit ungerader Nukleonenzahl die niedersten Einteilchenzustände tiefer liegen als in g-g-Kernen und deshalb die inneren Nukleonenbewegungen der Rotation weniger gut folgen können, was in einer Vergrösserung des Trägheitsmomentes für die Rotation resultiert. Für diese tiefliegenden Einteilchenzustände ist im allgemeinen nur die Bewegung des unpaarigen Nukleons verantwortlich.

In Fig. 25 sind die empirischen Winkelverteilungskoeffizienten $a_2^{(2)}(\xi_0)$ aus den beobachteten $E2$-Gammaübergängen zum Vergleich mit

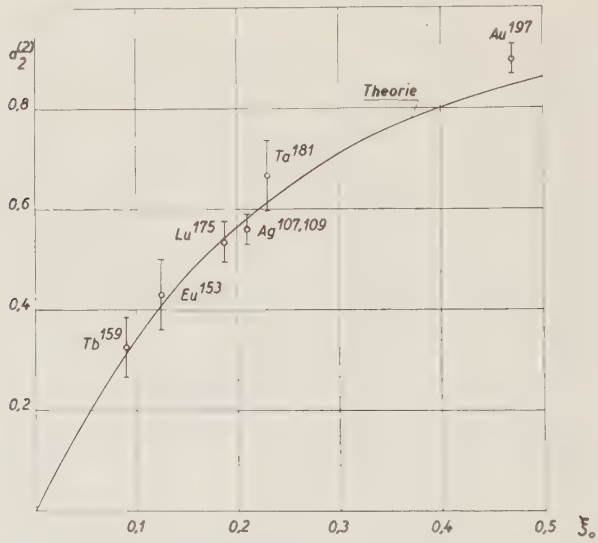


Fig. 25

Vergleich der empirischen Winkelverteilungskoeffizienten $a_2^{(2)}$ (ξ_0) aus den $E2$-Gammaübergängen mit neueren theoretischen Werten nach Alder et al.[1])
(ξ_0 = Energieparameter)

neueren theoretischen Werten[1]) über dem Energieparamter ξ_0 aufgetragen. Es kann von einer guten Übereinstimmung mit der Theorie gesprochen werden. McGowan und Stelson[42]) haben die quantenmechanische Theorie auch für g-g-Kerne in einer kürzlich erschienenen Arbeit bestätigt.

Durch diese Bestätigung der quantenmechanischen Theorie im Falle von $E2$-Übergängen in g–g- und u–g-Kernen können wir auch bei gemischten $M1 + E2$-Übergängen den aus den gemessenen Winkelverteilungen bestimmten Mischungsverhältnissen Vertrauen entgegenbringen. Für die Kaskadenübergänge vom 2. zum 1. Rotationsniveau

der Kerne Ta^{181}, Lu^{175}, Tm^{169}, Ho^{165} und Tb^{159} stehen die so bestimmten Mischungsverhältnisse in Einklang mit den aus den Verzweigungsverhältnissen ermittelten Werten, obwohl für die letzteren die Genauigkeit ziemlich geringer ist. Weiterhin haben diese Winkelverteilungsmessungen das Vorzeichen von δ geliefert, wodurch für die gyromagnetischen Faktoren das eine weniger wahrscheinliche Lösungspaar sicher ausgeschlossen werden darf.

Die gyromagnetischen Faktoren g_R für die Rotationsbewegung zeigen Abweichungen vom theoretischen Wert $g_R = Z/A \equiv 0{,}4$ für einen homogen geladenen, rotierenden Kern. Die Messgenauigkeit ist jedoch nicht genügend, um diese Abweichungen interpretieren zu dürfen*). Einerseits deuten die Trägheitsmomente darauf hin, dass nur ein Teil der Kernmaterie an der Rotationsbewegung teilnimmt; andrerseits ist zu erwarten, dass in Kernen mit einem unpaarigen Nukleon dessen Bewegung wesentlich zum Trägheitsmoment und damit auch zum Rotationsimpuls $\vec{R}$ (siehe Fig. 1) beiträgt.

Die Anschaffung und Herstellung der Apparaturen für diese Arbeit war durch finanzielle Hilfe der Schweizerischen Volkswirtschaftsstiftung möglich. Einer von uns (M.M.) ist der Firma Brown Boveri & Cie. in Baden persönlich für finanzielle Unterstützung zu Dank verpflichtet.

Literatur

1) K. Alder, A. Bohr, T. Huus, B. Mottelson and A. Winther, Rev. Mod. Phys. *26*, 432 (1956).
2) A. Bohr and B. R. Mottelson, Kgl. Danske Videnskab. Selskab Mat.-fys. Medd. *27*, No. 16 (1953).
3) L. C. Biedenharn and M. E. Rose, Rev. Mod. Phys. *25*, 729 (1953).
4) J. M. Blatt and V. F. Weisskopf, Theoretical Nuclear Physics (John Wiley & Sons, Inc., New York 1952).
5) E. U. Condon and G. H. Shortley, Theory of Atomic Spectra (Cambridge University Press, New York 1935).
6) S. G. Nilsson, Kgl. Danske Videnskab. Selskab Mat.-fys. Medd. *29*, No. 16 (1955).
7) H. Guhl, Dissertation ETH., 1958.
8) D. Mäder, R. Müller und V. Wintersteiger, Helv. Phys. Acta *27*, 3 (1954).
9) J. H. Smith, Phys. Rev. *71*, 33 (1947).
10) L. A. Sliv und I. M. Band, Tabellen für K-Konversionskoeffizienten von Gammastrahlung, Moskau und Leningrad 1956.
11) C. F. Cook, C. M. Class and J. T. Eisinger, Phys. Rev. *96*, 658 (1954).
12) P. H. Stelson and F. K. McGowan, Phys. Rev. *99*, 112 (1955).

*) Anmerkung bei der Korrektur: In einer neuen Arbeit von Goldring und Scharenberg (Phys. Rev. *110*, 701 (1958)) sind die g_R-Faktoren der Kerne Nd^{150} und $Sm^{152,154}$ zu $g_R = 0{,}22$ und $0{,}21 \pm 0{,}04$ bestimmt worden, wobei auch stark gestörte Gammawinkelverteilungen der $E2$-Übergänge aus den 2^+-Niveaus beobachtet wurden.

[13]) E. M. Bernstein and H. W. Lewis, Phys. Rev. *100*, 1345 (1955).
[14]) T. Huus, J. H. Bjerregaard and B. Elbek, Kgl. Danske Videnskab. Selskab Mat.-fys. Medd. *30*, No. 17 (1956).
[15]) B. Elbek and C. K. Bockelman, Phys. Rev. *105*, 657 (1957).
[16]) W. I. Goldburg and R. M. Williamson, Phys. Rev. *95*, 767 (1954).
[17]) F. K. McGowan and P. H. Stelson, Phys. Rev. *99*, 127 (1955).
[18]) R. Joly, J. Brunner, J. Halter et O. Huber, Helv. Phys. Acta *28*, 403 (1955).
[19]) F. K. McGowan and P. H. Stelson, Phys. Rev. *103*, 1133 (1956).
[20]) J. V. Kane and S. Frankel, Bull. Am. Phys. Soc. Ser. II, *1*, 171 (1956).
[21]) G. Goldring and G. T. Paulissen, Phys. Rev. *103*, 1314 (1956).
[22]) R. H. Davis, A. S. Divatia, D. A. Lind and R. D. Moffat, Phys. Rev. *103*, 1801 (1956).
[23]) N. P. Heydenburg and G. M. Temmer, Phys. Rev. *104*, 981 (1956).
[24]) E. A. Wolicki, L. W. Fagg and E. H. Geer, Phys. Rev. *105*, 238 (1957).
[25]) E. M. Bernstein and H. W. Lewis, Phys. Rev. *105*, 1524 (1957).
[26]) J. T. Eisinger, C. F. Cook and C. M. Class, Phys. Rev. *94*, 735 (1954).
[27]) F. Boehm and P. Marmier, Phys. Rev. *103*, 342 (1956).
[28]) P. Debrunner, E. Heer, W. Kündig und R. Ruetschi, Helv. Phys. Acta *29*, 463 (1956).
[29]) E. N. Hatch, F. Boehm, P. Marmier and J. W. Du Mond, Phys. Rev. *104*, 745 (1956).
[30]) H. Kopfermann, Kernmomente (Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt 1956).
[31]) A. Steudel, Naturwiss. *44*, 371 (1957).
[32]) N. P. Heydenburg and G. M. Temmer, Phys. Rev. *100*, 150 (1955).
[33]) K. H. Lindenberger, Z. f. Phys. *141*, 476 (1955) und Naturwiss. *42*, 41 (1955).
[34]) B. Andersson, Proc. Phys. Soc. *69 A*, 415 (1956).
[35]) C. M. Class and U. Meyer-Berkhout, Nucl. Phys. *3*, 656 (1957).
[36]) T. Huus and A. Lundén, Phil. Mag. *45*, 966 (1954).
[37]) P. H. Stelson and F. K. McGowan, Bull. Am. Phys. Soc. Ser. II, *1*, 164 (1956).
[38]) N. P. Heydenburg and C. M. Temmer, Phys. Rev. *95*, 861 (1954).
[39]) L. W. Fagg, E. A. Wolicki, R. O. Bondelid, K. L. Dunning and S. Snyder, Phys. Rev. *100*, 1299 (1955).
[40]) G. M. Temmer and N. P. Heydenburg, Phys. Rev. *104*, 967 (1956).
[41]) G. M. Temmer and N. P. Heydenburg, Phys. Rev. *99*, 1609 (1955).
[42]) F. K. McGowan and P. H. Stelson, Phys. Rev. *106*, 522 (1957).

Elektromagnetisch gestörte Gammawinkelverteilungen des 197 keV-Überganges im F^{19}

von **M. Martin, R. Szostak*)** und **P. Marmier**

Physikalisches Institut der Eidg. Technischen Hochschule, Zürich

(31. III. 1958)

Summary. The pertubation of the angular distribution of the 197 keV gamma rays following inelastic scattering of protons in F^{19} has been measured as a function of an external magnetic field for some solid and liquid targets. The influence of electric quadrupole pertubations is discussed and a value of $+(3{,}5 \pm 0{,}5)$ nuclear magnetons for the magnetic moment of the 197 keV state has been determined.

1. Einleitung

Der 197-keV-Zustand des F^{19} kann durch inelastische Protonenstreuung am F^{19} oder durch den Betazerfall des O^{19} gebildet werden. Er zerfällt durch einen $E2$-Übergang in den Grundzustand und besitzt eine Lebensdauer, die von LEHMANN et al.[2]) mit einer Koinzidenzmessung zu $(1{,}23 \pm 0{,}07) \cdot 10^{-7}$ sec bestimmt worden ist. Die Gamma-Winkelverteilung oder die γ-γ-Winkelkorrelation kann durch ein äusseres Magnetfeld beeinflusst werden und gestattet eine Bestimmung des magnetischen Momentes des 197-keV-Zustandes.

Solche Messungen sind mit dem 4-MeV-Protonenstrahl des ETH-Cyclotrons an zwei festen und zwei flüssigen Targets geeigneter Fluorverbindungen durchgeführt worden, um einerseits das magnetische Moment zu bestimmen und andererseits den Einfluss störender, elektrischer Quadrupolwechselwirkungen abzuklären, die eine Fehlerquelle bei der Bestimmung des magnetischen Moments bilden können. Ausserdem wurde der Einfluss der Protonenenergie im Bereich von 2,5 bis 4 MeV auf die Anisotropie der Gamma-Winkelverteilung dicker Targets ohne äusseres Magnetfeld untersucht, um den Vergleich der bei verschiedenen Protonenenergien gemachten Messungen sicherzustellen.

Ähnliche Messungen sind schon von verschiedenen Autoren veröffentlicht worden[1])[2])[3])[4])[5]). Ein Vergleich der Versuchsbedingungen und -ergebnisse dieser Arbeiten gestattet die Angabe eines gemittelten, magnetischen Momentes mit engeren Fehlergrenzen.

*) Technische Universität Berlin, Deutschland.

2. Theorie und Messmethode

Nach Abragam und Pound[6]) wird die magnetisch gestörte Gamma-Winkelverteilung einer flüssigen Quelle wie folgt berechnet:

$$W(\Theta,H)=\int_0^\infty\left\{1+A_2\,e^{-\lambda_2 t}\,P_2\left[\cos\left(\Theta-\omega t\right)\right]\right\}e^{-\lambda t}\,\frac{dt}{\tau} \tag{1}$$

Hierin bedeuten:

$\omega=\frac{\mu\mu_n}{I\hbar}\cdot H$	Larmorfrequenz
$\mu\mu_n, I$	Magnetisches Moment und Spin des Zustandes
H	Magnetfeld senkrecht zur Messebene
$\lambda=1/\tau$	Zerfallskonstante des angeregten Zustandes
λ_2	Konstante einer elektrischen Quadrupolwechselwirkung in der Flüssigkeit
A_2	Anisotropiekoeffizient der ungestörten Gamma-Winkelverteilung

Mit $$P_2\left[\cos\left(\Theta-\omega t\right)\right]=\frac{1}{4}\left[1+3\cos 2\left(\Theta-\omega t\right)\right]$$

ergibt sich für die Gamma-Winkelverteilung bei einem Magnetfelde H:

$$\frac{1+\frac{\lambda_2}{\lambda}}{1+\frac{\lambda_2}{\lambda}+\frac{1}{4}A_2}\,W(\Theta,H)=1+\frac{A_0}{(1+x^2)^{\frac{1}{2}}}\cos 2\left(\Theta-\Delta\Theta\right) \tag{2}$$

wobei:

$$x=\frac{2\,\omega}{\lambda+\lambda_2}=\frac{2\,\omega\tau}{1+\frac{\lambda_2}{\lambda}} \tag{3}$$

$$\Delta\Theta=\frac{1}{2}\operatorname{arc\,tg}\,x \tag{4}$$

$$A_0=\frac{\frac{3}{4}A_2}{1+\frac{\lambda_2}{\lambda}+\frac{1}{4}A_2} \tag{5}$$

Für die Gamma-Winkelverteilung ohne Magnetfeld bekommt man:

$$w(\Theta)=\frac{W(\Theta,0)}{W(90°,0)}=1+\beta_2\cos^2\Theta \tag{6}$$

wobei:

$$\beta_2=\frac{\frac{3}{2}A_2}{1+\frac{\lambda_2}{\lambda}-\frac{1}{2}A_2}=\frac{2\,A_0}{1-A_0} \tag{7}$$

Um das magnetische Moment μ (in Kernmagnetonen $\mu_n=e\hbar/2\,Mc$) des Kernes im angeregten Zustande mit dem Spin I zu bestimmen, kann man entweder für verschiedene Feldstärken H die Gamma-Winkelverteilungen $W(\theta, H)$ messen und deren Verschiebungen $\Delta\Theta$ bestimmen,

wie dies SUGIMOTO und MIZOBUCHI[4]) getan haben, oder aber gleichzeitig mit zwei Detektoren unter zwei verschiedenen Winkeln – z. B. symmetrisch zur Einfallsrichtung der Protonen – die Gammaintensitäten registrieren und ihr Verhältnis bilden, wie dies von LEHMANN et al.[2])[5]) durchgeführt worden ist. Man bekommt dabei eine vom Magnetfeld H abhängige Grösse $R(H)$, die für die Feldstärken 0 und ∞ den Wert 1 und für irgendeine Feldstärke H_0 ein Maximum annehmen muss.

Eine von systematischen Fehlern (wie Asymmetrien der Messanordnung) unabhängigere Grösse bekommt man, wenn man das Doppelverhältnis $\varrho(H)$ der Intensitätsverhältnisse für entgegengesetzt gleiche

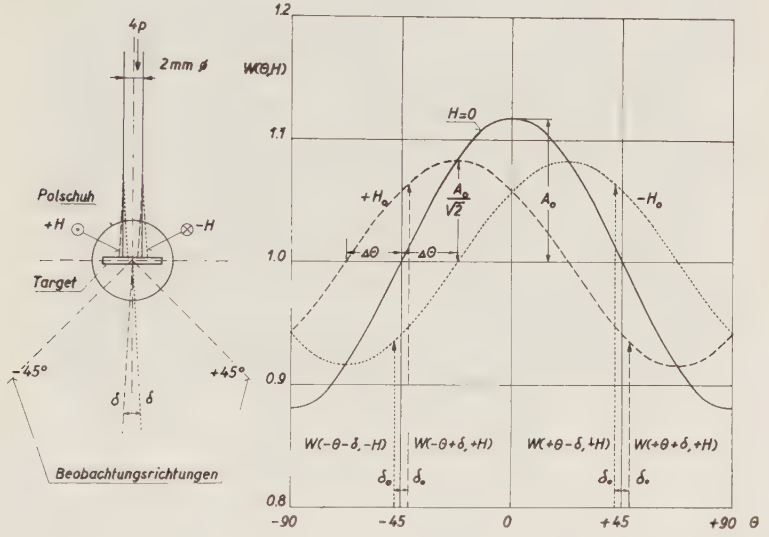


Fig. 1.

Zur Erläuterung von magnetisch gestörten Gamma-Winkelverteilungen und des durch magnetische Ablenkung der Protonen bedingten Winkelfehlers.

Magnetfelder bildet. Für die Beobachtungswinkel $\Theta = \mp 45^0$ und unter Berücksichtigung eines durch die Ablenkung der Protonen im Magnetfeld bedingten Winkelfehlers $\mp \delta(H)$ ergibt sich für dieses Doppelverhältnis (siehe Fig. 1):

$$\varrho(H) = \frac{R(+H)}{R(-H)} = \frac{\dfrac{W(-\Theta+\delta,+H)}{W(+\Theta+\delta,+H)}}{\dfrac{W(-\Theta-\delta,-H)}{W(+\Theta-\delta,-H)}} = \left(\frac{1+A(x)\sin 2\Phi}{1-A(x)\sin 2\Phi}\right)^2 \tag{8}$$

wobei:

$$A(x) = \frac{A_0}{(1+x^2)^{\frac{1}{2}}} \tag{9}$$

$$\Phi(x) = \Delta\Theta(x) + \delta(x) = \frac{1}{2}\operatorname{arc\,tg} x + \delta_0 \frac{x}{x_0} \tag{10}$$

*

Der Winkelfehler δ kann dem Magnetfeld proportional gesetzt werden. Das Doppelverhältnis $\varrho(H)$ geht für $x = x_0$ durch ein Maximum, wenn:

$$x_0^2 \frac{1 + \frac{2\,\delta_0}{x_0}}{1 - 2\,\delta_0 x_0} = 1 + (1 + x_0^2)\,2\,\frac{\delta_0}{x_0} \tag{11}$$

Ohne Winkelfehler ($\delta_0 = 0$) liegt das Maximum bei $x_0 = 1$; wenn der Winkelfehler klein ist ($2\,\delta_0 \ll 1$), so liegt das Maximum noch immer bei

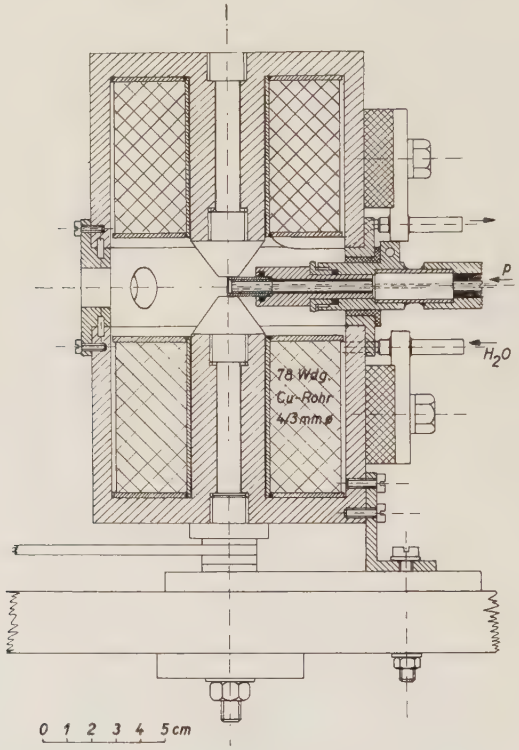


Fig. 2

Magnet zur Beeinflussung von Gamma-Winkelverteilungen und zur Messung magnetischer Momente angeregter Zustände.

$x_0 = 1$, wie in Gl. (11) leicht einzusehen ist. Beim Magnetfeld H_0, wo $\varrho\,(H)$ durch ein Maximum geht, kann also ein durch die Ablenkung der Protonen bedingter Winkelfehler von weniger als 3° ohne merkliche Verschiebung des Maximums in Kauf genommen werden. Für den in Fig. 2 und Abb. 1 ersichtlichen Magneten mit 8 mm Polabstand wurde für ein Magnetfeld von 10000 Gauss und Protonen von 4 MeV ein

Winkelfehler von etwa 3° aus der Feldverteilung berechnet*). Damit ist für die Messung von $g\,\tau$-Produkten (g = gyromagnetischer Faktor) die untere Grenze bei etwa:

$$g\,\tau = \frac{\hbar}{2\,\mu_n H_0} > 10^{-8}\,\text{sec}\;(\lambda_2 = 0) \tag{12}$$

Dadurch ist die Zahl der Kerne, für die man das magnetische Moment eines angeregten Zustandes nach dieser Methode messen könnte, ziemlich beschränkt, denn Lebensdauern über 10^{-8} sec sind relativ selten.

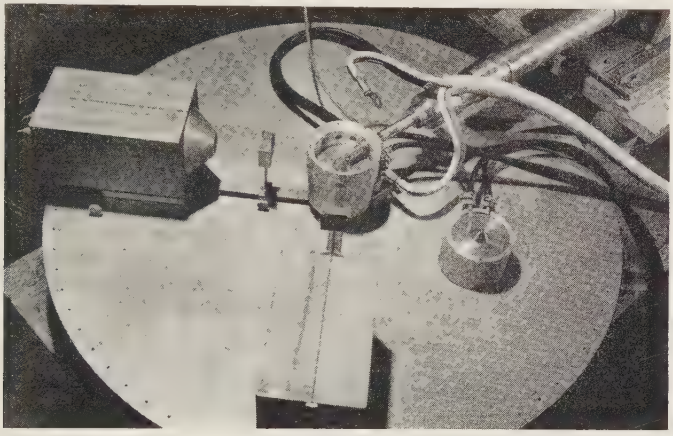


Abb. 1

Messanordnung: Auf dem Messtisch sind sichtbar das Strahlrohr, der Magnet und die beiden Detektoren mit vorgeschalteten Absorbern.

Aus dem Maximum $\varrho\,(H_0)$ kann der Koeffizient A_0 der Winkelverteilung und damit die Anisotropie β_2 einer Winkelverteilungsmessung ohne Magnetfeld verifiziert werden:

$$\varrho\,(H_0) \cong \left(\frac{1+\frac{A_0}{2}}{1-\frac{A_0}{2}}\right)^2 \text{ für } 2\,\delta_0 \ll 1 \tag{13}$$

Für Flüssigkeiten, in welchen eine elektrische Quadrupolwechselwirkung zwischen einem inneren elektrischen Feldgradienten und dem Quadrupolmoment des Kernes eine weitere Störung der Gammaemission hinzubringt, kann aus dem Orte H_0 des Maximums nur folgende Grösse ermittelt werden:

$$\frac{g\,\tau}{1+\frac{\lambda_2}{\lambda}} = \frac{\hbar}{2\,\mu_n H_0} \tag{14}$$

*) Die Ablenkung der Protonen in der Target ist vernachlässigbar klein.

Kann derselbe Kern in verschiedenen flüssigen Verbindungen untersucht werden und findet man eine Flüssigkeit, für die eine elektrische Quadrupolwechselwirkung vernachlässigbar ist, so kann für andere Flüssigkeiten aus dem Vergleich der ϱ-Kurven die Konstante λ_2 ermittelt werden. Dies war im Falle des F^{19} für Fluorbenzol durch Vergleich mit einer wässerigen Lösung von Calciumfluorid möglich.

3. Messanordnung und Messergebnisse

Die Messanordnung ist aus der Abb. 1 und der verwendete Magnet aus Fig. 2 ersichtlich. Der ausgelenkte und magnetisch fokussierte 4-MeV-Protonenstrahl des ETH-Cyclotrons wird durch eine Bleiblende auf einen Strahl von $D = 2$ mm Durchmesser reduziert und trifft auf eine für die Strommessung isolierte Target von etwa 1 mm Dicke und 6 mm Durchmesser, die senkrecht zur Strahlrichtung steht. Im Falle flüssiger Targets wurde die entsprechende Menge der Flüssigkeit in einen kleinen Kupferzylinder von 6 mm Innendurchmesser und einem Boden von 0,1 mm Dicke eingefüllt. Dann wurde ein weiterer, hineinpassender Zylinder von 5 mm Innendurchmesser, auf dem eine dünne Silberfolie von 21 mg/cm² Dicke weich aufgelötet war, vorsichtig eingeschoben und die ganze Target mit Glyptallack vakuumdicht gemacht. Die 4-MeV-Protonen werden in der vorgeschalteten Silberfolie auf eine Energie von etwa 3 MeV abgebremst, bevor sie in die Flüssigkeit eindringen.

Das Magnetfeld, das senkrecht zur Einfallsrichtung der Protonen und zur Messebene steht, wird von einem Magneten erzeugt, dessen topfförmige, geschlossene Konstruktion ein rasch abfallendes Streufeld gewährleistet, was für einen möglichst kleinen Winkelfehler und zur Bewahrung der Photomultiplier vor magnetischer Beeinflussung notwendig ist. Die beiden Erregerspulen bestehen aus wassergekühltem und baumwollumsponnenem Kupferrohr von 4/3 mm Durchmesser und sind für 180 Amp und je 1,8 kW Leistung dimensioniert. Das Magnetfeld wurde mit Hilfe einer geeichten, kleinen Meßspule und einem Fluxmeter mit einer Genauigkeit von wenigstens $\pm$ 5% bestimmt. In der horizontalen Messebene sind in dem die beiden Magnethälften zusammenhaltenden Stahlring Bohrungen vorgesehen, um der Gammastrahlung den Weg in die unter $\Theta = \pm 45°$ aufgestellten Detektoren freizulassen. Als Detektoren dienen zwei 1 × 1-inch-NaI(Tl)-Kristalle, und zur Registrierung der elektrischen Impulse stehen ein 20-Kanal- und ein 1-Kanal-Impulsanalysator zur Verfügung.

Der interessierende Teil des Gammaspektrums und das Niveauschema des F^{19} sind in Fig. 3 wiedergegeben. Die beiden Zustände bei 108 und 197 keV werden durch Coulombanregung und vorwiegend durch $(p,p'\gamma)$-Prozesse bevölkert und ergeben eine grosse Gammaausbeute, welche die

Messungen relativ leicht macht. Das Gammaspektrum zeigt nur die direkten Übergänge zum Grundzustand, wovon der 108-keV-Übergang isotrop, während der 197-keV-Übergang ein $E2$ mit ziemlich grosser Anisotropie ist. Die in einer Messkammer aus Aluminium ohne Magnetfeld gemessenen Gamma-Winkelverteilungen für zwei verschiedene Protonenenergien und für dicke Targets aus Calciumfluorid CaF_2 und Teflon $(CF_2)_n$ sind in Fig. 4 zusammengestellt. Im Bereich zwischen 2,5 und 4,1 MeV scheint die Anisotropie des $E2$-Überganges nicht von der Protonenenergie abzuhängen, weil die Bevölkerung fast ausschliesslich durch $(p, p' \gamma)$-Prozesse aus hochangeregten Zuständen des F^{19} erfolgt.

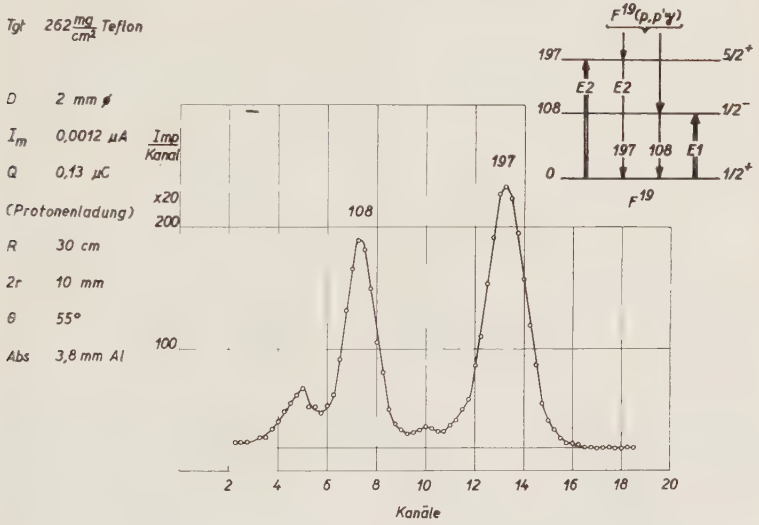


Fig. 3

Gammaspektrum bei Bestrahlung von Teflon mit 4-MeV-Protonen

Tgt Target, Dicke in mg/cm²
I_m Mittlerer Targetstrom
Q Registrierte Protonenladung
R Abstand Target-NaI-Kristall
D Protonenstrahl-Durchmesser (Fig. 1)
$2r$ Bleikanalöffnung vor NaI-Kristall
Θ Beobachtungswinkel
Abs Absorber zwischen Target und NaI-Kristall

Für die Messungen mit dem Magnetfeld wurde der 1-Kanal-Impulsanalysator auf die 197-keV-Linie eingestellt und die Messung nach Erreichen einer vorgewählten Stosszahl durch diesen abgestellt. Im 20-Kanal-Impulsanalysator wurden die zur Erfassung der 197-keV-Linie und des Untergrundes geeigneten Kanäle addiert und letzterer von ersterer subtrahiert. Dieselbe Messung wurde jeweils mit entgegengesetztem Magnetfeld wiederholt und der Magnet zwischen zwei Messungen immer mit Wechselstrom sorgfältig entmagnetisiert.

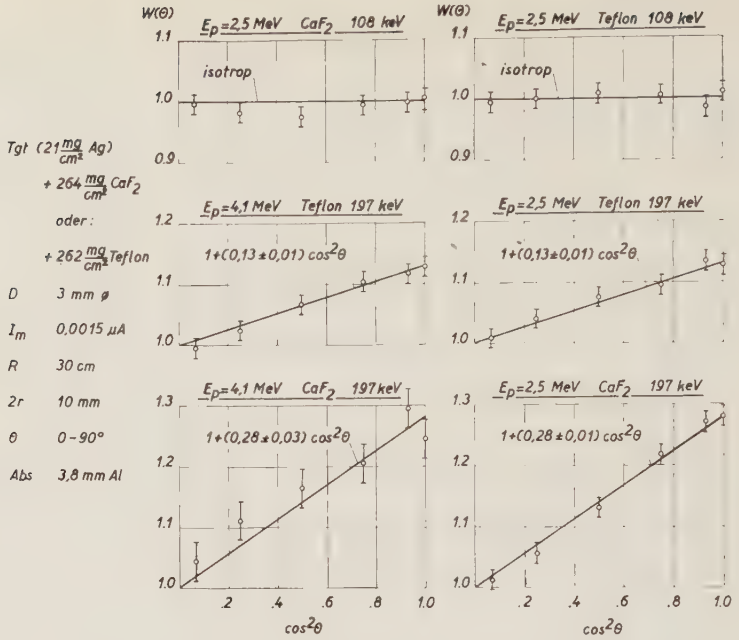


Fig. 4

Gamma-Winkelverteilungen bei Bestrahlung von Calciumfluorid und Teflon mit 2,5- und 4,1-MeV-Protonen

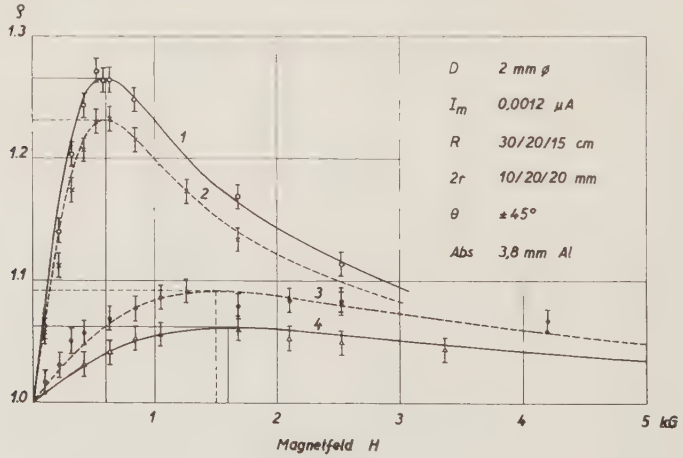


Fig. 5

$\varrho(H)$-Kurven magnetisch beeinflusster Gamma-Winkelverteilungen bei Bestrahlung verschiedener Fluorverbindungen mit Protonen

Targets:	1	100 mg/cm² CaF_2, fest	Calciumfluorid
	2	600 mg CaF_2/cm³ H_2O, flüssig	Calciumfluorid
	3	400 mg/cm² $C_6H_5CF_3$, flüssig	Fluorbenzol
	4	262 mg/cm² $(CF_2)_n$, fest	Teflon

Das Ergebnis der Messungen an zwei festen (ausgezogene Kurven) und zwei flüssigen (gestrichelte Kurven) Targets ist in Fig. 5 wiedergegeben. Die mit ihren mutmasslichen Fehlergrenzen eingetragenen Messpunkte wurden durch theoretische Kurven gemäss Gl. (8) möglichst gut angepasst. Die Auswertung der Messergebnisse ist aus der Tab. I ersichtlich.

Tabelle I

Auswertung der Messergebnisse aus Fig. 5

[a] Anisotropie berechnet aus A_0 nach Gl. (7).
[b] Berechnet aus den A_0-Verhältnissen nach Gl. (5).
[c] Berechnet aus den H_0-Verhältnissen nach Gl. (14).
[d] Keine elektrische Quadrupolwechselwirkung angenommen

Target	E_p MeV	$\varrho(H_0)$	A_0	β_2 [a] %	H_0 Gauss	$\frac{\lambda_2}{\lambda}$ [b]	$\frac{\lambda_2}{\lambda}$ [c]	$g\tau$ $\cdot 10^{-7}$ s
1	4	1,266	0,118	27	600 ± 50	0[d]	0[d]	1,74 ± 0,15
2	3	1,231	0,105	23,5	600 ± 50	0,12	0	
3	3	1,092	0,044	9,5	1500 ± 100	1,75	1,5	
4	3	1,062	0,031	6,5	1600 ± 200			

4. Diskussion der Messergebnisse

Während für beide CaF_2-Targets die Feldstärken H_0 kaum verschieden ausfallen, ergibt sich für die flüssige Target ein etwas kleineres Maximum als für die feste. Das Maximum für die feste Target entspricht der ohne Magnetfeld gemessenen Anisotropie. Es scheint, dass das CaF_2 in wässeriger Lösung eine stärkere Störung der Gamma-Winkelverteilung durch elektrische Quadrupolwechselwirkungen bewirkt als im festen Zustande. Messungen von Lehmann et al.[1)2)] haben allerdings gezeigt, dass diese Effekte nur Fehler von etwa 2,5 ± 2,5% verursachen könnten, während vorliegende Messung auf grössere Fehler deutet. Die mit dem Fluorbenzol durchgeführte Messung zeigt eine sehr starke elektrische Wechselwirkung. Die Abnahme des Maximums und die Zunahme des H_0-Wertes stehen in erster Näherung miteinander in Einklang. Wie Phillips und Jones[3)] schon bemerkt haben, ist das Teflon eine ungeeignete Target, weil durch das Protonenbombardement die Struktur stark in Unordnung gerät und elektrische Feldinhomogenitäten entstehen, die die Anisotropie mit der Zeit vermindern. Die Diskrepanz zwischen der ohne Magnetfeld gemessenen Anisotropie und dem sich aus dem A_0 der Messung 4 ergebenden Werte ist deshalb verständlich. Nach stundenlanger Bestrahlung zeigten die Teflontargets auch eine ziemlich starke makroskopische Zerstörung.

In Tabelle II sind verschiedene Arbeiten mit deren Versuchsbedingungen und -ergebnissen zusammengestellt. Die $g\tau$-Werte von LEHMANN et al.[1)2)], PHILLIPS und JONES[3)] und vorliegender Arbeit stimmen recht gut überein, während die mit aufgedampften, dünnen Targets durchgeführten Messungen von SUGIMOTO und MIZOBUCHI[4)] und von TREACY[5)] ausserhalb der Fehlergrenzen liegende, kleinere Werte liefern, was auf eine Störung der Gamma-Winkelverteilung durch innere elektrische oder magnetische Felder in aufgedampften Targets hinweist.

Tabelle II

Vergleich verschiedener Arbeiten über die Messung des magnetischen Momentes des 197-keV-Zustandes im F^{19}

	Vorliegende Arbeit	LEHMANN [1)2)]	PHILLIPS [3)]	SUGIMOTO [4)]	TREACY [5)]
E_p MeV	3...4	5	$O^{19}(\beta^-)F^{19}$	1,38	0,873
Target, Quelle	CaF_2, fest u. wässerig	CaF_2 wässerig	HF flüssig	CaF_2-Film auf Cu	NaF-Film auf Cu
Messung	$\varrho - \frac{R(+H)}{R(-H)}$	$\frac{W(+45°, H)}{W(-45°, H)}$	$\frac{W(180°, H)}{W(\ 90°, H)}$	$\gamma\ (\Theta, H)$	$\frac{W(0°) - W(100°)}{W(0°) + W(100°)}$
H_0 Gauss	600 ± 50	587 ± 12			
$g\tau \cdot 10^{-7}$ s	$1{,}74 \pm 0{,}15$	$1{,}78 \pm 0{,}04$	$1{,}74 \pm 0{,}08$	$1{,}2 \pm 0{,}08$	$1{,}35 \pm 0{,}15$

Für das magnetische Moment des 197-keV-Zustandes im F^{19} ergab vorliegende Messung den Wert $\mu = +(3{,}5 \pm 0{,}5)$, während man aus den drei erstgenannten Arbeiten folgenden, gemittelten Wert bekommt:

$$\underline{\mu = +(3{,}6 \pm 0{,}2) \text{ Kernmagnetonen}}$$

Die Anschaffung und Herstellung der für diese Untersuchung benötigten Apparaturen war durch finanzielle Unterstützung der Schweizerischen Volkswirtschaftsstiftung möglich. Herrn J. DE BOER, der bei vorbereitenden Messungen behilflich war, sei hier der beste Dank ausgesprochen.

Literatur

[1)] P. LEHMANN, A. LÉVÊQUE et M. FIEHRER, Compt. rend. *241*, 700 (1955).
[2)] P. LEHMANN, A. LÉVÊQUE and R. PICK, Phys. Rev. *104*, 411 (1956).
[3)] W. R. PHILLIPS and G. A. JONES, Phil. Mag. *1*, 576 (1956).
[4)] K. SUGIMOTO and A. MIZOBUCHI, Phys. Rev. *103*, 739 (1956).
[5)] P. B. TREACY, Nature *176*, 923 (1955).
[6)] A. ABRAGAM and R. V. POUND, Phys. Rev. *92*, 943 (1953).

Der Wirkungsquerschnitt für Paarerzeugung durch 6.3 MeV γ-Quanten im Coulombfeld des Elektrons

von **Ch. J. Frei***), **H. H. Staub und H. Winkler****)
Physikalisches Institut der Universität Zürich

(24. III. 1958)

Summary. The pair production cross-section for γ-rays of 6.3 MeV energy in the field of the electron has been determined by measuring the ratio of the total, nuclear and electronic pair cross sections for the pairs of elements Be-Al and Mg-C. Representing the pair formation cross section per atom by

$$\Phi = r_0^2 \alpha [\Gamma_n(E) \cdot Z^2 + \Gamma_e(E)\, Z]$$

it is found that the ratio of electronic to nuclear cross section Γ_e/Γ_n at $E = 6.3$ MeV is equal to 0.5 ± 0.05 very close to the theoretical value 0.4 given by Borsellino.

Einleitung

Auf die Möglichkeit der Paarerzeugung durch γ-Strahlen im Coulombfeld von Elektronen hat zuerst F. Perrin[1]) hingewiesen. Die Energieschwelle für diesen Prozess beträgt 4 mc^2. Eine Durchmusterung von Wilsonkammeraufnahmen nach Elektronendrillingen zeigte[2]), dass der Wirkungsquerschnitt für diesen Prozess kleiner ist als für Paarerzeugung an einem Kern mit $Z = 1$. Später von verschiedenen Autoren angestellte theoretische Untersuchungen[3]) bestätigten dieses Ergebnis.

Bisher liegen vier experimentelle Bestimmungen des Wirkungsquerschnittes bei γ-Energien zwischen 6,3 und 300 MeV vor. Die direkte Beobachtung der Triplettbildung ist nur in der Wilsonkammer möglich, da schon wenig oberhalb der Schwellenenergie fast stets eines der drei Elektronen einen sehr kleinen Impuls[3]) erhält. Bei 6,3 MeV haben Philips und Kruger[4]) aus dem Verhältnis der Zahl der Elektronenzwillinge zur Zahl der Tripletts in einer Wilsonkammer das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte am Kern und an den Hüllenelektronen bestimmt. Dieselbe Methode benutzten Gaerttner und Yeater[5]) für die Bremsstrahlung eines 100-MeV-Betatrons. Sie bildeten für die Energiebereiche von 5 bis 20 MeV und von 20 bis 100 MeV zwei Mittelwerte des Verhältnisses der Wirkungsquerschnitte. Doch besteht auch in der

*) z. Zt.: University of Rochester, N. Y.
**) z. Zt.: Universität Bonn.

Wilsonkammer die Gefahr, die Spur des dritten langsamen Elektrons zu übersehen und so einen Teil der Tripletts als Elektronenzwillinge zu beobachten. Die Bestimmung des Wirkungsquerschnittes aus der Totalabsorption durch Subtraktion aller anderen bekannten Absorptionsprozesse, wie sie von ANDERSON und Mitarbeitern[6]) bei 300 MeV ausgeführt wurde, ist nur bei hohen Energien möglich. Unterhalb etwa 100 MeV überwiegen Compton-Streuung, Kernphotoprozesse und anderes den gesuchten Effekt zu stark. Auf indirektem Wege lässt sich das fragliche Verhältnis aus der Abhängigkeit des totalen Paarwirkungsquerschnittes von der Atomnummer Z ermitteln. Dafür muss man die Z-Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes für Paarerzeugung am Kern ziemlich genau kennen. R. L. WALKER[7]) hat seine Messungen über den totalen Wirkungsquerschnitt, ausgeführt mit einem Paarspektrometer bei 17,5 MeV, in dieser Weise ausgewertet. Allerdings ist der totale Wirkungsquerschnitt hier nur aus einer Auswahl von Paaren bestimmter Energie gewonnen.

Methode

Wir haben nach der gleichen Methode das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte bei 6,3 MeV γ-Energie bestimmt. Dazu wird das Verhältnis der Zahl der total erzeugten Paare in zwei Stoffen mit verschiedenem Z aus der Annihilationsstrahlung der Positronen bestimmt. Bei 6,3 MeV ist die Z-Abhängigkeit der Paarerzeugung am Kern aus einer Arbeit von STAUB und WINKLER[8]), deren Resultat die theoretischen Abschätzungen von DAVIES, BETHE und MAXIMON[9]) bestätigt, ziemlich genau bekannt. Bei dieser Energie ist die Abhängigkeit fast genau proportional mit Z^2, wie dies die erste Bornsche Näherung für den Wirkungsquerschnitt ergibt. Abschirmungseffekte können bei den niedrigen γ-Energien vernachlässigt werden. Der totale Wirkungsquerschnitt für Paarerzeugung Φ eines Atoms wird also bei Berücksichtigung der Erzeugung am Elektron

$$\Phi = \alpha r_0^2 \left[Z^2 \Gamma_n(E) + Z \Gamma_e(E) \right] . \tag{1}$$

Hierin bedeuten die Γ Funktionen, die nur von der Energie E der γ-Strahlung abhängen und die beide von der Grössenordnung 1 sind. Das erste Glied mit Γ_n beschreibt den Kernanteil, das zweite mit Γ_e den Beitrag der Hüllenelektronen. $\alpha r_0^2 = 1/137\ (e^2/mc^2)^2$ ist die übliche Einheit des Wirkungsquerschnittes und beträgt $0{,}579 \times 10^{-27}$ cm^2.

Aus dem Verhältnis der atomaren Wirkungsquerschnitte $\varphi = \Phi_B/\Phi_A$ für zwei Stoffe A und B erhält man das gesuchte Verhältnis $\gamma = \Gamma_e/\Gamma_n$ als

$$\gamma = \frac{Z_A^2 \varphi - Z_B^2}{Z_B - Z_A \varphi} . \tag{2}$$

Zur Bestimmung von φ benutzten wir eine schon von HAHN, BALDINGER

und HUBER[10]) und STAUB und WINKLER[8]) verwendete Methode. Die in den Probekörpern gleicher Geometrie aus den Stoffen A und B bei gleicher Bestrahlung erzeugten Positronen werden im Probekörper selbst abgebremst und annihiliert und durch die beiden koinzidenten Annihilationsquanten gemessen. Um aus der Annihilationsstrahlung auf q schliessen zu können, sollen vom Moment der Erzeugung der Paare an beide Probekörper sowohl für die Positronen, als auch für die 511-kV-Strahlung möglichst gleiche Eigenschaften (Weglänge, Streuung, Absorption usw.) haben, d. h. gleiche Elektronendichte besitzen. Geringe Unterschiede in diesen Eigenschaften müssen durch Korrekturen erfassbar sein. Der Nulleffekt durch ausserhalb der Probekörper erzeugte und darin zerfallende Positronen ist bei dieser Methode grundsätzlich nicht vollständig messbar und also nur ungenau bekannt; er soll daher ebenfalls klein sein. Die Schwächung der Primärstrahlung im Probekörper muss klein sein, damit die Bestrahlung der beiden Probekörper in der Tiefe nicht allzu verschieden ist. Für diesen Effekt müssen ebenfalls Korrekturen angebracht werden.

Versuchsanordnung

Fig. 1 zeigt die Versuchsanordnung. Die γ-Strahlung wurde an der van de Graaff-Anlage der Universität Zürich mit der Reaktion $F^{19}(p,\alpha,\gamma)O^{16}$ erzeugt, wobei Quanten von 6,14, 6,91 und 7,11 MeV auftreten. Die beiden Linien der Kaskade von $F^{19}(p,\gamma)Ne^{20}$ treten nur sehr schwach mit etwa 0,1% der Intensität der 6-MeV-Linien auf. Nach den Intensitätsangaben von CHAO u. a.[11]) ist die mittlere Energie der Strahlung 6,3 MeV, wenn alle Resonanzen unterhalb 1,5 MeV angeregt werden. Der Protonenstrahl des van de Graaff-Generators von ca. 50 μA Intensität und 1,5 MeV Energie fällt durch eine Blende von 4 mm Durchmesser auf eine rotierende wassergekühlte Target, die aus einer dünnen aufgedampften Schicht von CaF_2 besteht und unter einem Winkel von 45° zum Protonenstrahl steht.

Von dieser Quelle wird durch einen 17 cm langen Bleikanal, gefolgt von einem 5 cm langen Goldkollimator, rechtwinklig zum Protonenstrahl ein scharf begrenztes konisches Bündel von ca. 2° Öffnungswinkel ausgeblendet. Am Ausgang des Kanals passiert das γ-Strahl-Bündel eine magnetische Positronensperre, durchdringt den zylindrischen Probekörper von 7 cm Länge und 2,5 cm Durchmesser in Längsrichtung und fällt dann durch 4 cm Blei auf den 3,8 × 3,8 cm grossen NaI(Tl)-Szintillationskristall des Monitors. Der Durchmesser des Probekörpers ist so gewählt, dass auch bei Justierschwankungen von $\pm$ 0,2 mm beim Auswechseln der Probekörper das ganze Bündel einschliesslich Halbschatten auf diesen trifft. Zwei gegenüberliegende Szintillationszähler mit

NaI(Tl)-Kristallen von 3,8 × 2,5 cm, die senkrecht zum Primärbündel stehen, registrieren die Annihilationsstrahlung aus dem Probekörper in Koinzidenz, wobei ein genügend langes Probestück über den Koinzidenzbereich hervorragt, so dass sich dieser im Positronengleichgewicht befindet. Die magnetische Positronensperre besteht aus einem Permanentmagneten mit geeignet geformten Polstücken und dient zur Abschirmung der Probekörper von den zahlreichen Positronen, die z. T. an der Wand

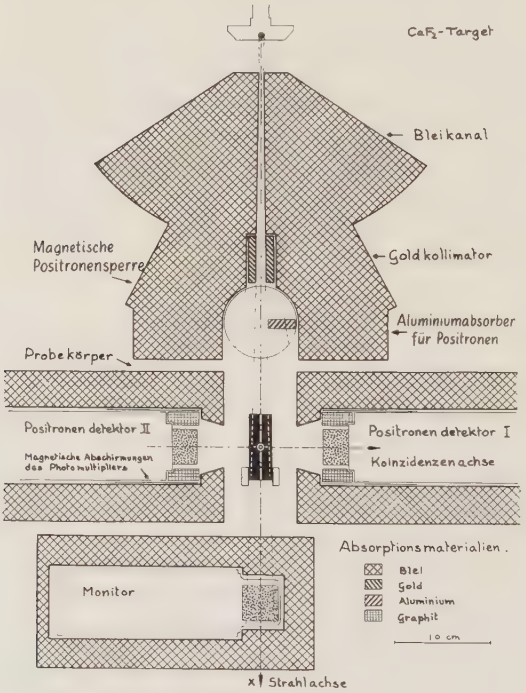


Fig. 1
Versuchsanordnung, Horizontalschnitt

des Kollimators, z. T. direkt in der Target beim $0 \rightarrow 0$-Übergang des O^{16} entstehen. In Fig. 2 sind der Feldverlauf sowie die Trajektorien einiger Positronen maximaler Energie dargestellt. Wie die Figur zeigt, können hochenergetische, unter geeignetem Winkel vom Kollimator emittierte Positronen durch die Sperre zum Probekörper dringen. Zu ihrer Entfernung dient der einseitige Absorber von 1 cm Aluminium, der selbst nicht von der direkten γ-Strahlung getroffen wird und damit seinerseits praktisch keine zusätzlichen Positronen liefert.

Die Wahl der Probekörper ist durch die Form des Ausdruckes (1) der zu messenden Grösse γ bestimmt. Für eine totale Messzeit $t = t_A + t_B$

wird der Fehler $\Delta\gamma$, wenn dieser ausschliesslich durch die statistischen Fehler der gemessenen Annihilationsquanten bestimmt ist und die Probekörper dieselbe Elektronendichte und dieselbe Geometrie besitzen,

$$\Delta\gamma = \text{const.}\,\frac{\sqrt{Z_A+\gamma}\cdot\sqrt{Z_B+\gamma}}{\sqrt{Z_A+\gamma}-\sqrt{Z_B+\gamma}}\cdot\frac{1}{\sqrt{t}}$$

und die Einzelmesszeiten:

$$\frac{t_A}{t_B} = \sqrt{\frac{Z_B+\gamma}{Z_A+\gamma}}\,.$$

Hieraus ergibt sich, dass z. B. Z_A möglichst klein, Z_B möglichst gross sein sollte.

Bei der Auswahl der Probematerialien beschränkten wir uns auf Leiter, vor allem Metalle, um zu verhindern, dass eine unbekannte Menge

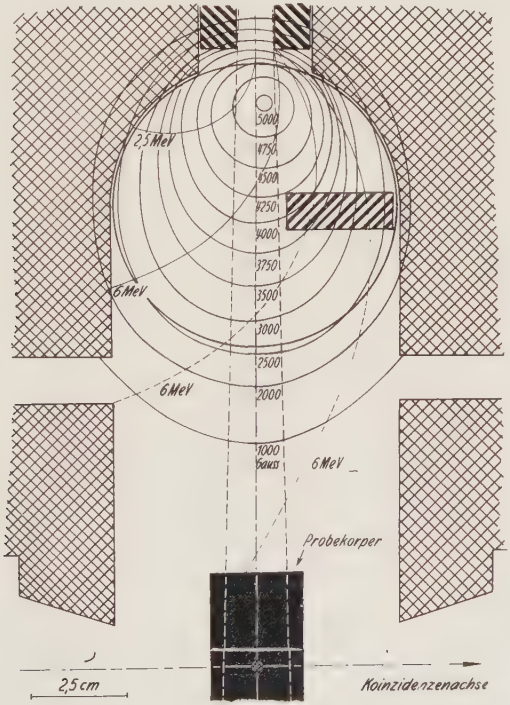


Fig. 2
Feldkonfiguration der Positronensperre

Positronium gebildet wird, welches teilweise in 3 Quanten zerfällt und so der Registrierung entgeht. Ferner besitzen die zu vergleichenden Probekörper A und B auf besser als 1% die gleiche Elektronendichte. Die

Ordnungszahl Z des schwereren Materials wurde dann so gewählt, dass die Photoabsorption der 511-keV-Strahlung im Probekörper noch zu vernachlässigen ist. Durch diese Massnahmen ist die Reichweite der Positronen und die Absorption der Annihilationsstrahlung in beiden Probekörpern bis auf sehr kleine Korrekturen gleich. Auch wird die Primärstrahlung in den Probekörpern in der gleichen Weise durch Compton-Effekt geschwächt, und die Anzeigen des Monitors hinter den Probekörpern müssen nur noch für die Differenz in der Absorption durch Paarerzeugung korrigiert werden. Die Dichte der Probematerialien darf nicht allzu klein sein, um die Messzeit in vernünftigen Grenzen zu halten. Ferner sollen beide Probekörper ohne Kassette mechanisch stabil sein, und schliesslich müssen auch geringe Verunreinigungen mit schweren Elementen bekannt sein.

Die erwähnten Forderungen engen die Auswahl im periodischen System stark ein. Die folgenden Stoffpaare erwiesen sich als mit gleicher Elektronendichte ϱe herstellbar:

	A	B
$\varrho e = 4{,}94 \cdot 10^{23}$ cm^{-3}:	Aluminium ($Z = 13$) ($\varrho = 1{,}70$ g/cm^3)	Beryllium ($Z = 4$) ($\varrho = 1{,}85$ g/cm^3)
$\varrho e = 5{,}17 \cdot 10^{23}$ cm^{-3}:	Magnesium ($Z = 12$) ($\varrho = 1{,}74$ g/cm^3)	Kohlenstoff ($Z = 6$) ($\varrho = 1{,}729$ g/cm^3)

Im ersten Paar musste die Dichte des Al um 37%, im zweiten die Dichte des als Graphit vorliegenden Kohlenstoffes um 23% gegenüber der natürlichen Dichte verringert werden. Bei fester Messdauer wird für das Paar Be-Al der Fehler 3,6mal grösser und für das Paar C-Mg 6,5mal grösser als für die günstigste Kombination Wasserstoff-Blei. Leider war es nicht möglich, die Elektronendichten aller vier Stoffe in Übereinstimmung zu bringen.

Die Prüfung der Reinheit der Probematerialien wird in einem besonderen Abschnitt beschrieben. Der Be-Körper bestand aus massivem, reinem Be der Fa. Péchiney, Paris. Der Al-Körper wurde aus einem sauerstoffarmen Al-Pulver der Fa. W. Marx und Co., Hallein-Taxach, in dünnen Schichten in einer gut einstellbaren Presse gepresst und anschliessend unter Schutzgas gesintert. Die maximale restliche Inhomogenität des Al-Körpers wurde durch Absorptionsmessungen mit 662 KeV γ-Strahlung einer Cs^{137}-Quelle zu $0{,}25 \pm 0{,}25\%$ bestimmt. Der Unterschied der Elektronendichten im Paar Be-Al betrug $0{,}55 \pm 0{,}15\%$. Der Mg-Körper bestand aus reinem massivem Magnesium der Dow Chemical Comp., Michigan, während der homogene, gepresste Graphitkörper der gewünschten Dichte in verdankenswerter Weise vom Service de Chimie Physique du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay aus reinem Reaktor-Graphit hergestellt wurde. Die Elektronendichten dieses zweiten Paares

unterschieden sich um $0{,}70 \pm 0{,}20\%$. Die Herstellung von Probekörpern gleicher Elektronendichte aus Legierungen scheiterte an metallurgischen Schwierigkeiten.

Das Blockschema der elektronischen Einrichtung zeigt Fig. 3. Das Impulsspektrum des Monitors wird durch einen Diskriminator unterhalb

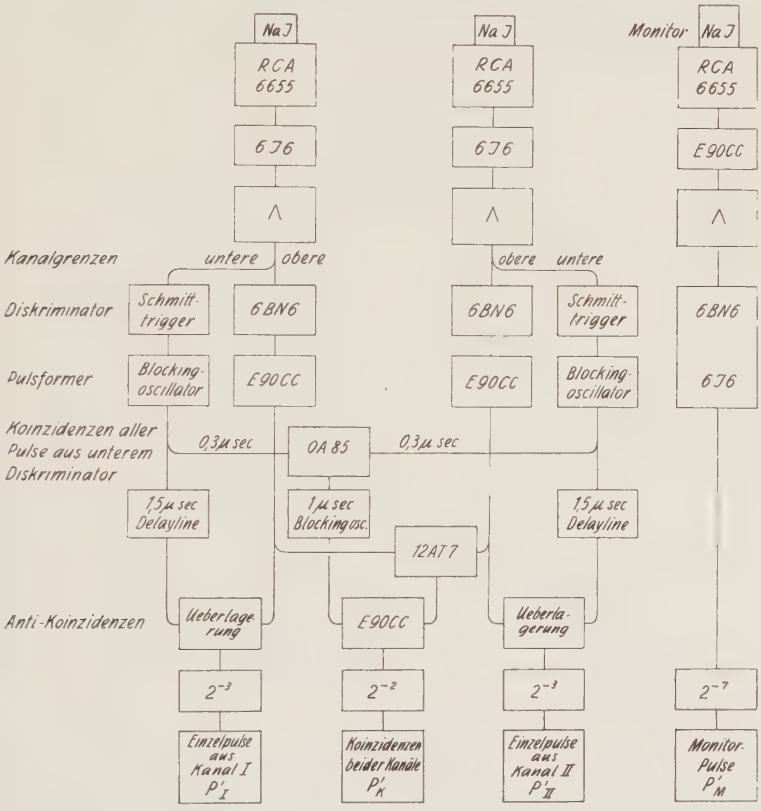


Fig. 3
Blockschema der Elektronik

2 MeV, also etwas über der Grenzenergie des Bremsspektrums des van-de-Graaff-Generators, abgeschnitten, wie Fig. 4*a* zeigt. Etwa 2% der einfallenden γ-Quanten werden gezählt. Fig. 4*b* zeigt das Impulsspektrum der Annihilationsstrahlung der seitlichen Zähler. Die Impulse der Photospitze der 511-KV-Strahlung, die in den eingezeichneten Kanal zwischen zwei Diskriminatoren fallen, werden einem Koinzidenzkreis mit einem Auflösungsvermögen von $0{,}3\,\mu$ sec zugeführt. Die Stabilität der Lage der Kanalgrenzen ist nur durch die Verstärkungsschwankungen der Vervielfacher gegeben. Wir verwendeten den Typ RCA 6655, von einem

hochstabilisierten Spannungsgerät mit ca. 1000 Volt betrieben in der von SHERR und GERHARDT[12]) beschriebenen Stabilisierungsschaltung. Von den Streufeldern der benachbarten magnetischen Positronensperre waren die Vervielfacher mehrfach durch Eisen und Permalloy abgeschirmt. Obgleich die Zahl der zufälligen Koinzidenzen selbst gegen den Untergrund klein war, wurden die in die Kanäle fallenden Einzelimpulse der beiden Koinzidenzzähler zur Kontrolle mit aufgenommen. Ihre Anzahl

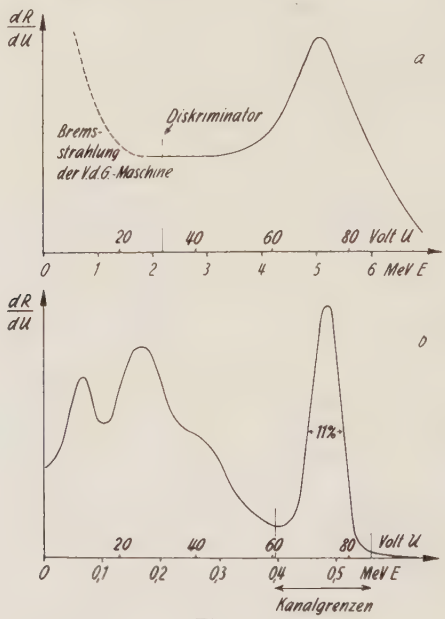


Fig. 4

a) Impulsspektrum der $F(p, \alpha, \gamma)O^{16}$
b) Impulsspektrum der Annihilationsstrahlung

war immer viel grösser, als der Koinzidenzzahl entsprach. Bei diesen Einzelimpulsen handelt es sich vor allem um Compton-gestreute primäre γ-Quanten.

Der Koinzidenzraumwinkel längs der Achse des Probekörpers wurde durch Verschiebung einer Cu^{64}-Positronenquelle auf der Achse aufgenommen und ist in Fig. 5 dargestellt. Auf Grund der Geometrie erwartet man eine dreieckförmige Verteilung. Die beobachteten seitlichen Ausläufer werden durch Streuung der Annihilationsquanten im Probekörper verursacht.

Die Messungen wurden in zwei ununterbrochenen je etwa 120 Stunden dauernden Serien zuerst am Paar Al-Be und hernach am Paar Mg-C durchgeführt. Um soweit als möglich den Einfluss von sehr raschen und

sehr langsamen Empfindlichkeitsänderungen der Registrierapparatur zu eliminieren, wurden die Probekörper eines Paares abwechselnd für Intervalle von ca. 20 Minuten in den Primärstrahl gebracht, wobei $1{,}28 \times 10^6$ Monitorimpulse gezählt wurden. Zur Erzielung des minimalen Fehlers wurden entsprechend mehr Intervalle mit dem leichteren Paarmaterial



Fig. 5
Koinzidenzraumwinkel längs Strahlachse

aufgenommen. Die Apparatur wurde häufig kontrolliert. Ihr einwandfreies Funktionieren zeigte sich u. a. darin, dass die Streuung der einzelnen Messwerte p'_{AB} für das Verhältnis der Koinzidenzzahlen innerhalb der erwarteten statistischen Schwankungen lag. Die Messresultate sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Von den in Tabelle 1 enthaltenen Messwerten der Koinzidenzzahlen muss zunächst noch der Untergrund abgezogen werden, d. h. die Zahl derjenigen Koinzidenzen, die nicht von Annihilationsquanten eines im Probekörper erzeugten Positrons herrühren. Der Untergrund wurde durch die Anordnung der Versuchseinrichtung so weit wie möglich herabgesetzt. Eine theoretische Bestimmung des noch verbleibenden Restes ist wegen der Kompliziertheit der denkbaren Prozesse nicht möglich. Die experimentelle Bestimmung der verschiedenen Anteile des

*

Untergrundes geschieht durch Messung der Koinzidenzrate in etwas veränderten Versuchsanordnungen, in denen die Registrierung von Koinzidenzen aus im Probekörper erzeugten Positronen ausgeschlossen ist. Die Ergebnisse dieser Messungen, auf einen Registrierabschnitt von $1{,}28 \times 10^6$

Tabelle 1

	Be	Al	C	Mg
Effektive Messzeit h . . .	76	43	67	46
Totalzahl der Koinzidenzen	40810	63520	70060	90010
Totalzahl der Monitorimpulse $\times 10^{-6}$	249,3	129,8	279,1	185,8
Durchschnittliche Koinzidenzzahl pro Monitorintervall ($1{,}28 \times 10^6$ Monitorimpulse)	$209{,}6 \pm 1{,}0$	$626{,}6 \pm 2{,}5$	$321{,}4 \pm 1{,}2$	$620{,}2 \pm 2{,}1$
Mittleres Koinzidenzverhältnis p'_{AB}	0,3322		0,5190	
Mittlere beobachtete Streuung von p'_{AB} . . .	$0{,}0021 \pm 0{,}0001$		$0{,}0029 \pm 0{,}0002$	
Gemäss Poissonverteilung berechnete mittlere Streuung von p'_{AB} . . .	$0{,}0021 \pm 0{,}0001$		$0{,}0026 \pm 0{,}0002$	

Monitorimpulsen bezogen, sind in Fig. 6 angegeben. Die Koinzidenzen durch Untergrund wurden folgendermassen aufgeteilt:

1. Koinzidenzen, die bei Abwesenheit des Probekörpers registriert werden. Sie können verursacht werden z. B. durch Höhenstrahlteilchen, Comptonstreuung oder Paarerzeugung und Annihilation der nicht vollständig abgeschirmten primären γ-Strahlung in den Koinzidenzdetektoren und deren Umgebung. Der zeitproportionale Anteil, wie er z. B. durch Höhenstrahlung verursacht wird, wurde bei abgestellter γ-Strahlung gemessen und war mit $0{,}16 \pm 0{,}02$ Koinzidenzen pro 20 min sehr klein. Der der γ-Strahlungsintensität proportionale Anteil wurde ohne Probekörper ermittelt und ergab sich (vgl. Fig. 6A) zu $1{,}1 \pm 0{,}2$ Koinzidenzen pro Monitorintervall ($1{,}28 \times 10^6$ Monitorimpulse).

2. Koinzidenzen, die durch die vom Probekörper gestreute primäre γ-Strahlung in den Detektoren ausgelöst werden, wie z. B. Annihilation des Positrons eines durch ein gestreutes Quant erzeugten Paares in einem der Koinzidenzdetektoren und Registrierung eines Annihilationsquants im anderen Detektor. Solche Prozesse (zusammen mit denjenigen unter 1.) wurden durch die Anordnung Fig. 6B erfasst, bei welcher die beiden Detektoren gegeneinander denselben räumlichen Winkel besitzen wie in der Messanordnung, aber nicht auf die winkelkorrelierten Anni-

hilationsquanten aus dem Probekörper ansprechen können. Ihre Zahl ist, wie sich aus der Differenz B–A ergibt, klein. Dies ist, falls nicht eine starke Winkelabhängigkeit vorhanden ist, auch bei der Messanordnung der Fall.

3. Koinzidenzen, die nicht durch die primäre γ-Strahlung, sondern durch Sekundäreffekte in den Probekörpern ausgelöst werden. Dies sind insbesondere Annihilationsquanten von Positronen, die ausserhalb des Probekörpers erzeugt wurden, aber in diesem zerfallen. Da angenommen werden darf, dass die Dichte dieser Streupositronen infolge der magnetischen Sperre klein und gleichmässig über das koinzidenzfähige Volumen

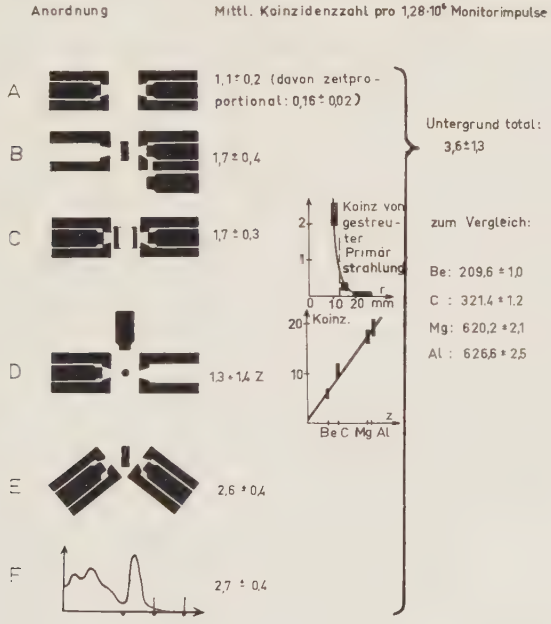


Fig. 6
Bestimmung der Koinzidenzraten des Untergrundes

verteilt ist, wurde dieser Untergrund mit hohlzylindrischen Probekörpern, die vom primären γ-Strahlbündel nicht getroffen werden, gemäss der Anordnung Fig. 6C gemessen. Da das γ-Strahlbündel nicht unendlich scharf begrenzt ist, sondern am Rand exponentiell abnimmt, müssen bei dieser Messung die durch die diffuse Randstrahlung zusätzlich erzeugten Paare subtrahiert werden. Diese Korrektur erhält man durch Variation der Durchmesser der Hohlkörper. Sie ist in Fig. 6C separat dargestellt. Nach deren Abzug beträgt der Untergrund aus 1 und 3 zusammen 1,7 Koinzidenzen pro Intervall. Gleichzeitig gibt diese Messung Aufschluss

über die Fehler, die durch Variationen in der Lage der Probekörper entstehen. Bei einer Exzentrizität der Probekörperachse von 1 mm nimmt die Koinzidenzrate bei Al um 0,6, bei Be um 0,2 ab.

4. Koinzidenzen durch Sekundärprodukte von Prozessen im Probekörper, die durch die primäre γ-Einstrahlung hervorgerufen werden, mit Ausnahme von Paarerzeugung. Hierher gehören zunächst die zufälligen Koinzidenzen zwischen Compton-gestreuten Primärquanten, deren Zahl aber infolge der kurzen Auflösungszeit sehr klein ist (maximal 0,3). Solche Koinzidenzen können aber z. B. auch ausgelöst werden: Im einen Detektor durch ein unter 90° gestreutes γ-Quant, wobei dieses etwa 500-KeV Energie erhält, und im anderen Detektor durch das ein- oder mehrfach unter 90° gestreute Comptonelektron. Ihre Anzahl lässt sich leicht abschätzen. Ist n die Atomdichte, so ist die Zahl dieser Prozesse proportional $n^2 \cdot Z^3$, oder für Probekörper gleicher Elektronendichte $n_0 = n \cdot Z$ proportional mit Z, d. h. ähnlich der Anzahl der Paarkoinzidenzen, welche proportional mit $nZ(Z+\gamma) = n_0(Z+\gamma) \approx n_0 \cdot Z$ geht. Besitzt dieser Untergrund exakt dieselbe Z-Abhängigkeit wie die Paarerzeugung, so geht er in die gesuchte Grösse $\varphi = \Phi_B/\Phi_A$ überhaupt nicht ein. Neben solchen Z-proportionalen Prozessen treten aber auch Z-unabhängige Prozesse auf, vor allem Zweiquanten-Comptonstreuung. In den Anordnungen D, E, F (Fig. 6) wurde versucht, diesen Untergrund nach seiner Z-Abhängigkeit getrennt zu erfassen. Die Koinzidenzen in D zeigen die Form $D_0 + D_1 Z$, wobei $D_1 Z$ der Grössenordnung nach mit der theoretischen Abschätzung übereinstimmt. Wenn auch dieser Anteil nicht exakt die Z-Abhängigkeit der Paarerzeugung besitzt, so kann er doch wegen seiner Kleinheit weggelassen werden. Anordnung E gab ein von Z unabhängiges Resultat. Dies ist zu erwarten, da das Compton-Quant des oben beschriebenen Z-proportionalen Prozesses nur bei 90°-Stellung der Zähler zum Primärstrahl in den Energiekanal fällt. In F wurden die beiden Energiekanäle so nach oben verschoben, dass keine 511-keV-Quanten mehr erfasst wurden. Auch hier kann der Z-proportionale Anteil nicht auftreten; er wurde auch nicht gefunden. Alle drei Anordnungen können jedoch Zweiquantenprozesse zählen, weshalb der Untergrund D_0 im wesentlichen gleich dem in E und F sein sollte. D_0 ist zwar wesentlich kleiner als E und F, doch ist die statistische Genauigkeit bei D nicht ausreichend, um die Gleichheit sicher auszuschliessen. Theoretisch ergibt sich die Zahl der Zweiquantenprozesse, die bei hoher γ-Energie 1/137 der Einfachprozesse beträgt, in der gleichen Grössenordnung wie D_0 (bzw. E oder F).

Die gesamte (Z-unabhängige) Zahl der Untergrundskoinzidenzen wurde schliesslich erhalten durch

$$N_U - A + (B - A) + (C - A) - \tfrac{1}{3}\sqrt{(D_0 - A) + (E - A) + (F - A)} = 3{,}6 \pm 1{,}3$$

pro Monitorintervall, wobei der Untergrundsfehler so hoch angenommen wird, dass die Gleichheit von D_0 mit den Untergrundswerten E und F ermöglicht wird.

Untergrundskoinzidenzen können schliesslich durch β^+-aktive Elemente, die durch (γ,n)-Prozesse im Probekörpermaterial entstehen, verursacht werden. Für die in Frage kommenden Elemente C^{11}, Mg^{23} und Al^{26} liegen die Schwellenwerte für den γ,n-Prozess jedoch über der verwendeten γ-Energie.

Reinheit der Probekörper-Materialien

Zur Bestimmung von γ ist die genaue Kenntnis der chemischen Zusammensetzung, insbesondere der Verunreinigungen mit hoher Atomnummer, erforderlich. Für den Be-Körper lagen von der Herstellerfirma Péchiney nur obere Grenzen der Verunreinigungen vor mit Werten, die die vorliegende Messung um mehr als die Fehlergrenze verändern würden. Für C, Mg und Al lagen Reinheitsangaben vor, insbesondere für die sehr geringen Verunreinigungen des Graphits. Eine Überprüfung bzw. für Be eine Bestimmung der Reinheitsgrade wurde durch Messung des Massenabsorptionskoeffizienten für Röntgenstrahlen, 94 KeV-Kern-γ-Strahlung von Ag^{107}, 25 KeV $K\alpha$-Strahlung von Zinn und 22 KeV $K\alpha$-Strahlung von Silber vorgenommen. Diese Messung ist sehr empfindlich auf schwere Verunreinigungen, weil die Schwächung überwiegend durch photoelektrischen Effekt erfolgt, dessen Massenabsorptionskoeffizient für Wellenlängen unterhalb der K-Kante mit Z^4 geht. Allerdings ist es unmöglich, die zum Vergleich notwendigen Werte der reinen Stoffe exakt zu berechnen, da die Werte der Abschirmungskoeffizienten nicht genügend bekannt sind und die verwendete Strahlung, die durch Reflexion an Calcit erhalten wurde, nicht genügend monochromatisch ist. Im Falle der Aluminium- und Magnesiumproben wurde daher einfach ein Vergleich der Absorption der Probekörper mit derjenigen von spektroskopisch reinen Proben vorgenommen. Für den Graphitkörper lag eine exakte und vollständige Analyse der sehr geringen Verunreinigungen vor. Aus dem an diesem Graphit gemessenen Absorptionskoeffizienten konnten daher die effektiven mittleren Abschirmungskoeffizienten für die K- und L_I-Schale ermittelt werden und damit der Absorptionskoeffizient des reinen Berylliums berechnet werden. Unter der Annahme einer Verteilung der Verunreinigungskonzentrationen, wie sie die Herstellerfirma des Be für die Maximalkonzentrationen angab, wurde in den Messungen mit den drei Wellenlängen übereinstimmend der $0{,}2 \pm 0{,}1$te Teil der angegebenen Maximalwerte gefunden. Die Resultate dieser Messungen sind in Tabelle 2 zusammengestellt. $\Delta\mu_{phys}$ ist die gemessene Differenz der Massenabsorptionskoeffizienten des Probe-

körpers und des chemisch reinen Materials, $\Delta\mu_{chem}$ die aus den chemischen Analysenangaben berechnete Differenz. Im Falle des Be ist sie für die vom Hersteller angegebene Maximalkonzentration berechnet, so dass

$$\frac{\Delta\mu_{\text{Phys}}}{\Delta\mu_{\text{Chem}}}$$

hier den Bruchteil der tatsächlichen Verunreinigungen darstellt. Bei Al und Mg besteht im ganzen befriedigende Übereinstimmung zwischen Röntgen- und chemischer Analyse.

Tabelle 2

	94 KeV		25 KeV		22 KeV	
	$\Delta\mu$ Phys	$\Delta\mu$ Chem	$\Delta\mu$ Phys	$\Delta\mu$ Chem	$\Delta\mu$ Phys	$\Delta\mu$ Chem
Beryllium	0,0006 ± 0,0004;	0,0027	0,006 ± 0,004;	0,050	0,016 ± 0,004;	0,063
Graphit		0,0001		0,002		0,002
Magnesium	0,0019 ± 0,0008;	0,0008	0,008 ± 0,006;	0,013		
Aluminium-pulver	0,0035 ± 0,0008;	0,0010	0,053 ± 0,005;	0,040		

Tabelle 3

Verunreinigungen in % nach Angaben der Herstellerfirma:

Beryllium	99,86 %	0,03 Fe; 0,02 Si; 0,02 Al; 0,02 Mg; 0,01 C; 0,01 Ca; 0,01 Pb
Graphit	99,986%	0,003 Ca; 0,003 Na; 0,002 H
Magnesium	99,89 %	0,04 Mn; 0,03 Fe; 0,02 Al; 0,004 Cu; 0,005 Pb
Aluminiumpulver	99,40 %	0,24 Fe; 0,20 O; 0,10 Si; 0,03 Zn; 0,01 Pb

Resultate

Unter Berücksichtigung der chemischen Zusammensetzung der Probekörper und der nicht exakten Monochromasie der γ-Strahlung wird die Zahl der erzeugten Paare

$$p = \sum_{E,Z} \int \Phi(E,Z)\, n(Z)\, N(E,x)\, dx\,,$$

wobei Φ den totalen Wirkungsquerschnitt pro Atom mit der Ordnungszahl Z für die γ-Energie E, n die Zahl der Atome pro Volumeneinheit des Probekörpers, x die vom Probekörperzentrum aus gerechnete Koordinate in axialer Richtung zum Monitor hin und N die Zahl der γ-Quanten mit Energie E am Orte x darstellt. Das an der Stelle x geschaffene Positron

annihiliert an der Stelle x', die um die Reichweite der Positronen gegen x verschoben ist. Sei ferner $\Omega(x')$ der an der Stelle x' von jedem der beiden Szintillationskristalle aufgespannte Raumwinkel, $\eta(x')$ die Ansprechwahrscheinlichkeit der Kristalle für den Fall, dass ein Annihilationsquant einen in der Photospitze liegenden Impuls ergibt, $a(Z)$ das Verhältnis der 180° korrelierten 2-Quanten-Annihilation zur Totalzahl, das nach BETHE und WILLS[13]) berechnet werden kann, und $b(Z, x')$ der vom Orte x' stammende im Probekörper nicht absorbierte Bruchteil der 511 KeV-Strahlung. Die Zahl $N(E,x)$ der einfallenden γ-Quanten ist

$$N(E,x) = N_0 f(E) \cdot e^{-\tau(Z,E)(x-x_0)},$$

wenn N_0 die Totalzahl, $f(E)$ der Bruchteil der Quanten mit Energie E darstellt. $\tau(Z, E)$ ist der Absorptionskoeffizient für die primäre γ-Strahlung, x_0 die halbe Länge des Probekörpers. Damit wird die Zahl der registrierten Annihilationskoinzidenzen

$$P = N_0 \sum_{E,Z} \Phi(E,Z)\, n(Z)\, a(Z)\, e^{-\tau(E,Z)\, x_0} \int f(E)\, e^{-\tau(E,Z)\, x}\, b(Z,x')\, \frac{\Omega(x')}{2\pi}\, \eta^2(x')\, dx .$$

Die Zahl der Monitorimpulse ist entsprechend

$$P_0 = N_0 \sum_{E,Z} f(E) \cdot e^{-\tau(E,Z)\, 2\, x_0} \cdot \eta_M(E),$$

wenn η_M die Ansprechwahrscheinlichkeit des Monitorzählers für primäre γ-Quanten bedeutet.

Der Faktor b wird fast vollständig durch die Compton-Streuung der Annihilationsquanten bestimmt, da infolge der kleinen Ordnungszahl aller Materialien die Photoabsorption sehr gering ist. Wegen der nur geringfügigen Verschiedenheit der Elektronendichten der Probekörper lässt sich $b(x', Z)$ aufspalten in $b = b'(Z, x) \cdot b''(x')$. Bildet man nun noch für die nur schwach energieabhängigen Terme geeignete Mittelwerte, so ergibt sich mit der Dichte ϱ und der Atommasse M die gesuchte Grösse

$$\varphi = \frac{\Phi_B(\bar{E})}{\Phi_A(\bar{E})} = \frac{P_B}{P_{0B}} \frac{P_{0A}}{P_A} \frac{M_B}{M_A} \cdot \frac{\varrho_A}{\varrho_B} \cdot \frac{a_A\, b'_A\, c_A\, d_A\, e_A}{a_B\, b'_B\, c_B\, d_B\, e_B}. \qquad (3)$$

Hierin bedeutet

$$c_A = 1 + \sum_n \frac{M_A \Phi_n - M_n \Phi_A}{M_n \Phi_A} \quad c_n = 1 + \frac{1}{n_A \Phi_A} \sum_{Z \neq A} \Phi(E,Z)\, n(Z)$$

die Korrektur für die Verunreinigungen der Massenzahl M_n, der Massenkonzentration c_n und dem totalen Paarwirkungsquerschnitt Φ_n im

Probekörper mit der Ordnungszahl A. Dabei ist also die Summation über Z, die die Verunreinigungen erfasst, auf das Glied $\Phi(E, Z) \cdot n(Z)$ beschränkt. In allen anderen Gliedern wurde Z durch die Ordnungszahl A bzw. B des betreffenden Probekörpers ersetzt.

Die Korrektur $d = e^{-\tau(Z,\bar{E})\bar{x}}$ wird durch Mittelung über die dreieckförmige Empfindlichkeitskurve der Detektoren (Fig. 5) erhalten, wobei die Elektronenreichweite nach KATZ und PENFOLD[14]) benützt und ihre Z-Abhängigkeit nach PAUL und REICH[15]) berücksichtigt wurde. Schliesslich ist $e = e^{\tau(\bar{E},Z)\cdot x_0}$ die Korrektur für die Verschiedenheit der Absorption der auf den Monitor auftreffenden Primärstrahlung nach Durchlauf des Probekörpers. Die Werte, die für die Verhältnisse dieser Korrekturen berechnet wurden, sind mit den geschätzten Unsicherheiten in Tabelle 4 zusammengefasst.

Tabelle 4

Verhältnis der Korrekturen und Fehler in %

Korrekturgrösse		Al/Be	Fehler	Mg/C	Fehler
Zerfall im Flug	a_A/a_A	0,9902	± 0,1	0,9940	± 0,06
Absorption der 511-keV-Strahlung	b_A/b_B	0,9979	0,03	1,0016	0,03
Verunreinigungen . . .	c_A/c_B	0,9975	0,21	1,0008	0,02
Intensität der Primärstrahlung und Positronenreichweite . . .	d_A/d_B	1,0041	0,06	1,0004	0,01
Monitorzählrate	e_A/e_B	1,0231	0,03	1,0146	0,03

Verhältnis der Grössen und relative Fehler in %

Grösse		Al/Be	Fehler	Mg/C	Fehler
Dichte der Probekörper .	ϱ_A/ϱ_B	0,9257	± 0,14	1,0052	± 0,22
Atommassen der Probekörper	M_B/M_A	0,3341	0,04	0,4939	0,04
Koinzidenzrate	p'_B/p'_A	0,3322	0,64	0,5190	0,55
Untergrund	p_U	0,9885	0,42	0,9946	0,20

Dort sind auch die Verhältnisse der übrigen in φ eingehenden Grössen sowie deren relative Fehler angegeben. p'_B/p'_A ist das Verhältnis der gemessenen Koinzidenzraten vor Abzug des Untergrundes. Der bei p'_B/p'_A angegebene Fehler ist der aus der Zahl der registrierten Koinzidenzen ermittelte statistische Fehler. Die Subtraktion des Untergrundes gibt eine kleine Änderung des Koinzidenzverhältnisses und durch den Fehler

im Untergrund einen weiteren Beitrag zum Gesamtfehler. Beide den Untergrund betreffenden Grössen sind in Tabelle 4 unter p_U gesondert aufgeführt. Mit den Beziehungen (3) und (2) ergibt sich für die beiden Stoffpaare Be-Al und C-Mg

$$\gamma = \Gamma_e/\Gamma_n = 0{,}517 \pm 0{,}056 \text{ für Be-Al}$$

$$\text{bzw. } 0{,}456 \pm 0{,}085 \text{ für C-Mg}$$

oder als Mittel:

$$\gamma = \frac{\Gamma_e}{\Gamma_n} = 0{,}50 \pm 0{,}05 \quad (\text{bei } E\gamma = 6{,}3 \pm 0{,}2 \text{ MeV}) .$$

Hierbei ist die Gültigkeit der Beziehung (1) vorausgesetzt, d. h. die exakte Proportionalität des Kernanteils mit Z^2. Berücksichtigt man die innerhalb der Messgenauigkeit liegende geringe Abhängigkeit der Grösse Γ_n von Z, wie sie von STAUB und WINKLER[8]) bei der verwendeten γ-Energie gefunden wurde, so würde das Resultat um 0,01 bzw. 0,05 verkleinert, je nachdem, ob diese Abhängigkeit als quadratisch oder linear in Z angenommen wird. Mit dem von HOUGH[16]) berechneten absoluten Wert von $\Gamma_n = 2{,}46$ für die γ-Energie von 6,3 MeV erhält man aus dem gemessenen Wert von γ

$$\Gamma_e = \gamma \cdot \Gamma_n = 1{,}23 \pm 0{,}12 .$$

Diskussion der Ergebnisse

Der oben angegebene Wert für γ ist beinahe doppelt so gross wie der von PHILLIPS und KRUGER[4]) bei derselben γ-Energie gemessene Wert $\gamma = 0{,}256 \pm 0{,}017$. Diese Diskrepanz muss, wie in der Einleitung dargelegt, wohl mit der von PHILLIPS und KRUGER benützten Wilsonkammermethode zusammenhängen, bei der eine Anzahl von Elektronentripletts der Beobachtung entgeht.

In Fig. 7 sind die experimentellen Resultate bei kleinen γ-Energien mit den theoretischen Angaben von BORSELLINO, VOTRUBA, JOSEPH und REYNTJENS[3]) zusammengestellt. Die punktierten Geraden stellen jeweils die asymptotischen Ausdrücke für $E_\gamma/mc^2 \to \infty$ dar.

Bei den theoretischen Untersuchungen der Paarerzeugung kann an sich der totale Querschnitt nicht einfach aus den Anteilen des freien Kerns und demjenigen der freien Elektronen zusammengesetzt werden, sondern es sollte nach JOSEPH und ROHRLICH zwischen dem kohärenten und inkohärenten Anteil unterschieden werden. Sofern jedoch die kleinste auf Grund der Erhaltungssätze an das Elektron übertragene Energie seine Bindungsenergie übersteigt, so ist der inkohärente Wirkungsquerschnitt gleich demjenigen für Paarerzeugung am freien Elektron.

Bei den im vorliegenden Experiment verwendeten Elementen und der γ-Energie von 6,3 MeV ist dies der Fall und damit ein Vergleich mit den verschiedenen theoretischen Resultaten möglich.

Unter diesen gibt nur BORSELLINO Werte in allen Energiebereichen an, jedoch sind seine Werte sicher zu hoch bei sehr kleinen Energien, d. h. bei $E_\gamma/m_0c^2 - 4 \ll 1$, da er in seiner Rechnung (Bornsche Näherung) die Coulombwechselwirkung und vor allem das Paulische Ausschliessungsprinzip für die beiden Elektronen sowie die Wechselwirkung der einfallenden Strahlung mit dem Hüllenelektron, in dessen Feld das Paar

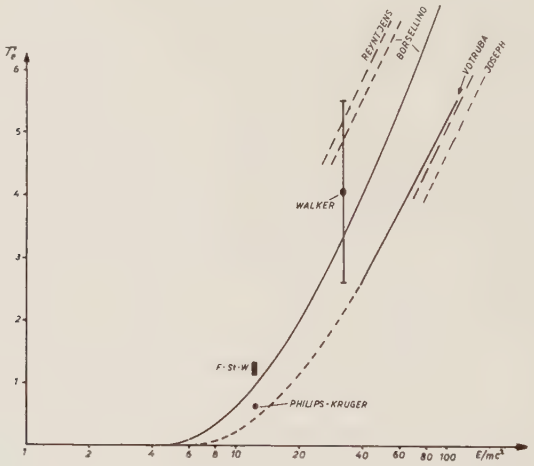


Fig. 7
Theoretische und experimentelle Werte von Γ_e

gebildet wird, vernachlässigt. In diesem Bereich sind die folgenden Beziehungen angegeben worden:

$$\Gamma_e = \frac{\pi\sqrt{3}}{216} \quad (E_\gamma/m\,c^2 - 4)^2 \quad \text{Borsellino}$$

$$\Gamma_e = \frac{\pi\sqrt{3}}{972} \quad (E_\gamma/m\,c^2 - 4)^2 \quad \text{Votruba}$$

$$\Gamma_e = 0{,}00205\,(E_\gamma/m\,c^2 - 4)^2 \quad \text{Reyntjens.}$$

Im Gebiete der sehr hohen Energien sind die von BORSELLINO berechneten Werte sicher zuverlässig, da die oben erwähnten Vernachlässigungen nicht mehr ins Gewicht fallen können. Andererseits sind bei der in der vorliegenden Arbeit benützten γ-Energie und den verwendeten Elementen mit niedrigem Z Abschirmungseffekte, die BORSELLINO und REYNTJENS nicht berücksichtigen, sicher noch nicht von Bedeutung.

Die asymptotischen Geraden in logarithmischer Darstellung haben folgende Werte:

$$\Gamma_e = 28/9 \log (2\, E_\gamma/m\, c^2) - \frac{218}{27} \quad \text{Borsellino}$$

$$\Gamma_e = 28/9 \log (2\, E_\gamma/m\, c^2) - \frac{102}{9} \quad \text{Votruba}$$

$$\Gamma_e = 28/9 \log (2\, E_\gamma/m\, c^2) - \frac{106}{9} \quad \text{Joseph}$$

$$\Gamma_e = 28/9 \log (2\, E_\gamma/m\, c^2) - \frac{218}{27} + 0{,}32 \quad \text{Reyntjens .}$$

In der Formel von Reyntjens stellt der letzte Term den kleinen Beitrag dar, den diejenigen Fälle beitragen, bei denen alle drei Elektronen grosse Impulse erhalten. Die für grosse Werte E_γ/mc^2 gültigen asymptotischen Geraden von Votruba und Joseph besitzen die gleiche Neigung wie diejenigen von Borsellino und Reyntjens. Votrubas Berechnung ist aber insofern vollständiger, als er Austausch und Rückstosseffekte berücksichtigt. Für hohe Energien fallen diese Effekte aber ausser Betracht. Dagegen sind, wie Joseph und Rohrlich gezeigt haben, die Näherungsrechnungen im Gebiete hoher Energien unsicher und stellen höchstens eine untere Grenze dar, so dass der Wirkungsquerschnitt sich tatsächlich der Assymptote nach Borsellino nähert. Dies ist auch in Einklang mit dem experimentellen Befund von Anderson, Kenney, McDonald und Post[6]), die bei $E_\gamma = 300$ MeV für Γ_e den Wert $14{,}2 \pm 1{,}0$ finden. Bei dieser Energie sind die berechneten Werte:

$$\Gamma_e = 13{,}9 \quad \text{Borsellino}$$

$$\Gamma_e = 10{,}7 \quad \text{Votruba}$$

$$\Gamma_e = 14{,}3 \quad \text{Reyntjens}$$

$$\Gamma_e = 10{,}2 \quad \text{Joseph .}$$

Von den beiden früheren, experimentellen Resultaten bei mittleren Energien ($E_\gamma/mc^2 < 100$) ist das Resultat von Phillips und Kruger[4]) $\Gamma_e = 0{,}63 \pm 0{,}04$ um beinahe einen Faktor zwei kleiner als der theoretische Wert von Borsellino. Die verhältnismässig geringe Abweichung von der punktiert eingezeichneten Interpolation der Werte von Votruba ist wohl mehr zufälliger Art, da diese Interpolation sehr unzuverlässig ist. Eine numerische Berechnung des Votrubaschen Wertes ist wegen der Kompliziertheit seiner Formeln nicht möglich. Der von Walker[7]) für $E_\gamma = 17{,}6$ MeV angegebene Wert ist mit dem berechneten Wert von Borsellino verträglich, aber mit einem grossen Fehler behaftet.

Der in der vorliegenden Arbeit gefundene Wert $\Gamma_e = 1{,}23 \pm 0{,}12$ weicht von dem von Borsellino berechneten $\Gamma_e = 1{,}0$ nur um den

doppelten Fehler ab. Berücksichtigt man den kleinen Zusatz von REYNTJENS für den Fall, dass alle 3 Elektronen schnell sind (der asymptotisch den Wert 0,32 besitzt), so scheint mit dem nach REYNTJENS vergrösserten Wert von BORSELLINO ausgezeichnete Übereinstimmung zu bestehen.

Zum Schlusse möchten wir den Herren Prof. HEITLER und Prof. ROHRLICH für Diskussion der theoretischen Aspekte danken. Den Herren Prof. W. STEPHENS, Dr. A. RYTZ, G. RASCHE, J.W. MÜLLER und Frl. FREI sind wir für die Mithilfe bei den Messungen zu Dank verpflichtet, ebenso den Herren Prof. P. MARMIER und Dr. HEINRICH für die Aufbereitung der radioaktiven Quellen.

Die Schweizerische Bankgesellschaft hat uns in freundlicher Weise das Gold für den Kollimator zinslos zur Verfügung gestellt. Für die Herstellung und die Reinheitsangaben der Probekörper danken wir den Firmen: Aluminium-Industrie, Neuhausen; Dow Chemical Co.; Cie Péchiney; Walter Marx & Co.; Service de Chimie et Physique du Centre d'Etude Nucléaire Saclay; Metallgiesserei Kanz und der Abteilung für industrielle Forschung der ETH. Der Schweizerischen Studienkommission für Atomenergie (SKA.) danken wir für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.

Literaturverzeichnis

[1]) F. PERRIN: C. R. Acad. Sci. Paris *197*, 1100 (1933).
[2]) L. V. GROSHEV, J. Phys. Acad. Sci. U.S.S.R. *5*, 115 (1941); K. ZUBER, Helv. Phys. Acta *15*, 38 (1942).
[3]) J. A. WHEELER und W. E. LAMB, Phys. Rev. *55*, 858 (1939); A. BORSELLINO, Nuovo Cimento *4*, 112 (1947); K. M. WATSON, Phys. Rev. *72*, 1060 (1947); P. NEMIROVSKY, Journ. Phys. Acad. Sci. U.S.S.R. *11*, 94 (1947); V. VOTRUBA, Phys. Rev. *73*, 1468 (1948); J. JOSEPH, Dissertation, State University of Iowa, 1955; J. REYNTJENS, Dissertation, Université Catholique de Louvain, 1956.
[4]) J. A. PHILLIPS und P. G. KRUGER, Phys. Rev. *76*, 1471 (1949).
[5]) E. R. GAERTTNER und M. L. YEATER, Phys. Rev. *78*, 621 (1950).
[6]) J. D. ANDERSON, R. W. KENNEY, C. A. MCDONALD JR. und R. F. POST, Phys. Rev. *102*, 1632 (1956).
[7]) R. L. WALKER, Phys. Rev. *76*, 1440 (1949).
[8]) H. STAUB und H. WINKLER, Helv. Phys. Acta *27*, 223 (1954).
[9]) H. DAVIES, H. A. BETHE und L. C. MAXIMON, Phys. Rev. *93*, 788 (1954).
[10]) B. HAHN, E. BALDINGER und P. HUBER, Helv. Phys. Acta *25*, 505 (1952).
[11]) C. Y. CHAO, A. V. TOLLESTRUP, W. A. FOWLER und C. C. LAURITSEN, Phys. Rev. *79*, 108 (1950).
[12]) R. SHERR und J. B. GERHART, Rev. Sci. Instr. *23*, 770 (1952).
[13]) H. A. BETHE und H. H. WILLS, Proc. Roy. Soc. London A *150*, 129 (1935).
[14]) L. KATZ und A. S. PENFOLD, Rev. Mod. Phys. *24*, 28 (1952).
[15]) W. PAUL und H. REICH, Zs. f. Phys. *127*, 429 (1950).
[16]) P. V. C. HOUGH, Phys. Rev. *73*, 266 (1948).

Interactions indirectes entre spins nucléaires dans les champs faibles

par **Dominique Roux**
Institut de Physique Expérimentale de l'Université de Genève

(29 III 1958)

Résumé. Ce travail a pour but l'étude des interactions indirectes entre spins nucléaires dans les champs faibles. Deux spectromètres de résonance nucléaire, fonctionnant dans la plage de fréquence 200–50 kc/s ont été réalisés. Le premier est un dispositif de haute sensibilité utilisant la modulation basse fréquence du champ statique H_0 pour l'observation de la résonance. Il est particulièrement destiné aux couplages indirects «forts» (compris entre 400 et 1000 c/s). Le second spectromètre est un appareil à haute résolution dont l'hétérodynage est direct et se fait à la fréquence de Larmor.

Nous montrons alors que dans ce domaine de champ magnétique:

a) le couplage indirect est bien une interaction indépendante du champ appliqué H_0;

b) le fait d'éliminer le déplacement chimique interne (proportionnel à H_0) permet de clarifier les spectres dus à des noyaux d'espèces différentes et par la suite d'interpréter les structures compliquées enregistrées aux champs forts;

c) on peut enfin mesurer avec précision la constante J correspondant à l'énergie d'interaction entre spins de noyaux différents.

Ainsi nous avons pu déterminer le degré de dissociation apparent des 2 acides $H_2PO(OH)$ et $HPO(OH)_2$ en solutions aqueuses concentrées en mettant en évidence son influence sur la valeur de J des liaisons H–P.

I. Introduction

L'apparition des structures, dans les liquides, en résonance magnétique nucléaire est due à l'influence du magnétisme électronique. Il faut distinguer deux effets: le déplacement chimique[1)2)3)4)] et le couplage indirect entre spins[5)6)].

Lorsqu'on place un échantillon dans un champ magnétique statique H_0, la fréquence de résonance d'un spin nucléaire

$$\nu_0 = \frac{|\gamma|}{2\pi} \cdot H_0$$

où γ = rapport gyromagnétique, n'est pas toujours la même que pour un noyau «nu». Cet écart δ est appelé déplacement chimique. Il est causé par une interaction entre le champ extérieur appliqué H_0 et les électrons moléculaires. En présence du champ H_0 il se produit à l'em-

placement du noyau un champ magnétique supplémentaire H', proportionnel à H_0, attribuable aux deux effets suivants: un mouvement de charges occasionné par la précession de Larmor de l'ensemble des électrons moléculaires d'une part et la polarisation des couches électroniques (paramagnétisme induit) d'autre part. Le champ magnétique statique total vu par le noyau est

$$H_{tot} = H_0 + H' = H_0(1 + \sigma)$$

Deux noyaux identiques, qui par leurs positions dans la molécule peuvent avoir une distribution différente de leurs électrons de valence, ont alors un déplacement chimique différent et l'on observe dans ce cas deux raies de résonance dont l'écart est appelé déplacement chimique interne ou «shift interne».

En plus du déplacement chimique, GUTOWSKY, MCCALL et SLICHTER[5]) et HAHN et MAXWELL[6]) ont découvert dans certains liquides et gaz la présence de structures qui apparaissent sous la forme de multiplets. En fonction de leurs observations ils ont pu expliquer ces structures en les attribuant à une énergie d'interaction de la forme $h.\, J_{AB} \cdot \vec{I}_A \cdot \vec{I}_B$ entre les noyaux A et B ($\vec{I}_A$ et $\vec{I}_B$ sont des vecteurs représentant les spins des noyaux A et B et J_{AB} est une fréquence indépendante du champ extérieur appliqué H_0 et de la température).

Dans les liquides, comme l'interaction dipolaire directe entre spins est rendue inobservable par le mouvement brownien des atomes, il faut envisager un couplage qui ne dépende pas de l'orientation relative des moments nucléaires.

RAMSEY et PURCELL[7])[8]) ont expliqué le mécanisme de cette interaction et interprété l'ordre de grandeur observé en attribuant son origine à un couplage indirect entre spins nucléaires par l'intermédiaire des électrons de valence: le moment nucléaire $\vec{\mu}_A$ produit à l'emplacement des électrons un champ magnétique qui a pour effet de déformer, en les polarisant, les couches électroniques. Ces couches électroniques ainsi déformées peuvent produire un champ magnétique H'' non nul à l'emplacement d'un autre moment nucléaire $\vec{\mu}_B$. Comme H'' dépend de $\vec{\mu}_A$, son interaction avec $\vec{\mu}_B$ équivaut à un couplage entre $\vec{\mu}_A$ et $\vec{\mu}_B$ indépendant de H_0.

L'aspect des spectres dépend du choix du champ extérieur H_0 puisque le déplacement chimique varie proportionnellement à H_0 alors que l'interaction indirecte en est indépendante. L'étude des structures se fait habituellement (pour différentes raisons que nous verrons plus loin) à des champs H_0 d'environ 6000 Gauss. Dans ce travail, nous nous proposons de faire varier H_0 dans de très grandes limites et de voir quel intérêt dans la mesure des constantes de couplage indirect peut présenter l'observation de spectres à des champs très faibles (50–15 Gauss).

II. Spectres de R.M.N. dans les liquides purs

1. *Expressions générales*

Pour calculer les fréquences de résonance d'un système de spins nucléaires dans une molécule, on peut négliger les effets de relaxation et obtenir des niveaux d'énergie stationnaires en utilisant l'Hamiltonien représentant l'énergie totale du système. Nous avons alors dans le cas le plus général d'une molécule contenant plusieurs groupes de noyaux semblables A, $B\ldots$

$$\mathrm{H} = -h\Big\{\sum_A \sum_a \nu_A M_A + \tfrac{1}{2}\sum_A \sum_{A\neq B} \sum_a \sum_b J_{AaBb}\cdot \vec{I}_{Aa}\cdot \vec{I}_{Bb} + \tfrac{1}{2}\sum_A \sum_a \sum_{b\neq a} J_{Aab}\cdot \vec{I}_{Aa}\cdot \vec{I}_{Ab}\Big\} \qquad (1)$$

où – chaque groupe de noyaux semblables est caractérisé par le fait que chacun de ses spins nucléaires a, b, $c\ldots$ aurait la même fréquence de résonance ν_A en l'absence de couplages indirects (déplacement chimique interne nul entre a, b, $c\ldots$);

– le symbole Aa signifie le noyau a du groupe A;

– le spin est représenté par le vecteur $\vec{I}_{Aa}$ avec la composante M_{Aa} suivant la direction du champ H_0;

– les majuscules A, $B\ldots$ caractérisent aussi bien des groupes de noyaux différents que des groupes de noyaux identiques ayant un déplacement chimique interne δ entre eux;

– la constante J_{AaBb} se rapporte au couplage indirect entre le spin a de A et b de B. Comme $J_{BbAa} = J_{AaBb}$ et $J_{Aab} = J_{Aba}$, chaque terme apparaît deux fois. Il faut donc introduire $\frac{1}{2}$ avant les sommations.

Il peut arriver que les noyaux semblables a, $b\ldots$ d'un groupe C aient le même couplage avec tous les autres noyaux, ce qui s'exprime par $J_{CaBa} = J_{CBa}$. On dira alors que les noyaux du groupe C sont équivalents. Dans ce cas, on peut négliger dans l'expression (1) le terme $\frac{1}{2}h\sum_a\sum_b J_{Cab}\cdot\vec{I}_a\cdot\vec{I}_b$ en vertu du théorème démontré par Gutowsky, McNeill et Slichter disant que les interactions entre spins équivalents sont inobservables. Si l'on pose $\sum_a \vec{I}_{Ca} = \vec{I}_C$, $\vec{I}_C$ représentant le spin total du groupe, l'Hamiltonien aura la forme:

$$\mathrm{H} = -h\Big\{\nu_C M_C + \sum_{A\neq C}\sum_a \nu_A M_{Aa} + \sum_{A\neq C}\sum_a J_{CAa}\cdot\vec{I}_C\cdot\vec{I}_{Aa} + \tfrac{1}{2}\sum_{A\neq C}\sum_{B\neq A,C}\sum_a\sum_b \cdot J_{AaBb}\cdot\vec{I}_{Aa}\cdot\vec{I}_{Bb} + \tfrac{1}{2}\sum_{A\neq C}\sum_a\sum_{b\neq a} J_{Aab}\cdot\vec{I}_{Aa}\cdot\vec{I}_{Ab}\Big\} \qquad (2)$$

Si maintenant chaque groupe ne possède que des noyaux équivalents nous aurons une expression de H simplifiée:

$$\mathrm{H} = -h\Big\{\sum_A \nu_A M_A + \tfrac{1}{2}\sum_A\sum_{B\neq A} J_{AB}\cdot\vec{I}_A\cdot\vec{I}_B\Big\} \qquad (3)$$

M_A étant la composante du vecteur $\vec{I}_A$ représentant les spins du groupe A suivant la direction de H_0.

En partant de l'Hamiltonien H on calcule les éléments de matrice H_{ik} à l'aide du calcul des perturbations et on obtient les niveaux d'énergie puis les fréquences de transition en résolvant l'équation séculaire donnée par le déterminant $[H_{mn} - E_n \delta_{mn}] = 0$.

Par une série d'exemples connus, nous allons voir comment s'esquisse le calcul et comment se présente un spectre en fonction de la valeur du champ magnétique directeur H_0.

2. *Cas particuliers*

Cas 1:2 groupes de noyaux équivalents. L'Hamiltonien (3) devient:

$$H = -h\left\{\nu_A M_A + \nu_B M_B + J_{AB} \cdot \vec{I}_A \cdot \vec{I}_B\right\} \tag{4}$$

Cas 1a: si la condition

$$\Delta = |\nu_A - \nu_B| \gg J_{AB} \tag{5}$$

est remplie[9]), on peut exprimer la perturbation des niveaux d'énergie $h\nu_A$ et $h\nu_B$ par $E' = h \cdot J_{AB} \cdot M_A \cdot M_B$ et les niveaux seront alors donnés par

$$E_{m_A m_B} = -h\left\{\nu_A m_A + \nu_B m_B + J_{AB} \cdot m_A \cdot m_B\right\} \tag{6}$$

où m_A, m_B sont les valeurs propres de M_A et M_B.

La loi de sélection pour les transitions est $\Delta m_A = \pm 1$; $\Delta m_B = 0$ ou $\Delta m_A = 0$; $\Delta m_B = \pm 1$. Il en résulte que la résonance de chaque groupe équivalent apparaît sous la forme d'un multiplet dont le nombre de composantes équidistantes (écart J_{AB} exprimé en cycles/sec) est donné par la somme $(2M + 1)$ des valeurs propres possibles m du nombre quantique magnétique M de l'autre groupe de noyaux équivalents. L'intensité de chaque composante est proportionnelle au nombre de façons dont on peut former l'état m à l'aide des spins de l'autre groupe.

Quand les noyaux des 2 groupes équivalents sont de la même espèce, $\Delta = |\nu_A - \nu_B|$ est égal au déplacement chimique interne δ_{AB} entre les 2 groupes. La condition (5) n'est alors pas toujours remplie et l'on a souvent $\delta_{AB} \sim J_{AB}$ pour la valeur du champ magnétique à laquelle on opère. Les spectres prennent alors des formes beaucoup plus complexes comme l'ont calculé Banerée, Das et Saha[10]) et Anderson[11]). Le nombre des transitions, leurs écarts et leurs intensités varient en fonction du rapport Δ/J. A titre d'exemple nous allons voir comment évolue l'aspect du spectre en fonction de Δ/J, donc H_0, pour le système le plus simple: celui de 2 spins de valeur $\frac{1}{2}$.

Cas 1b: 2 noyaux de spin $\frac{1}{2}$. Nous transformons l'Hamiltonien (4) en:

$$H = -h\left\{ \nu_0(M_A + M_B) + \tfrac{J}{2}\,(M_A - M_B) + J \cdot \vec{I}_A \cdot \vec{I}_B \right\} \qquad (7)$$

où l'on a posé

$$\nu_0 = \frac{\nu_A + \nu_B}{2}\,; \quad \Delta = \nu_A - \nu_B \quad \text{et} \quad J_{AB} = J.$$

Après avoir déterminé les états propres de H on obtient les niveaux d'énergie par résolution d'une équation séculaire du 2^e degré:

$$\left.\begin{aligned} E_1 &= -h\,(\nu_0 + \tfrac{J}{4}) & E_2 &= -h\left(-\tfrac{J}{4} + \tfrac{1}{2}\sqrt{J^2 + \Delta^2}\right) \\ E_3 &= -h\left(-\tfrac{J}{4} - \tfrac{1}{2}\sqrt{J^2 + \Delta^2}\right) & E_4 &= +h\,(\nu_0 - \tfrac{J}{4}) \end{aligned}\right\} \qquad (8)$$

Les fréquences de transition et leurs intensités relatives sont données au tableau I.

Tableau I

spin	fréquence de transition	intensité relative
A	$\nu_{12} = \nu_0 + J/2 - 1/2\sqrt{J^2+\Delta^2}$	$P_{12} = P_{24} = 1 + \dfrac{J}{\sqrt{J^2+\Delta^2}}$
B	$\nu_{13} = \nu_0 + J/2 + 1/2\sqrt{J^2+\Delta^2}$	
B	$\nu_{24} = \nu_0 - J/2 + 1/2\sqrt{J^2+\Delta^2}$	$P_{13} = P_{34} = 1 - \dfrac{J}{\sqrt{J^2+\Delta^2}}$
A	$\nu_{34} = \nu_0 - J/2 - 1/2\sqrt{J^2+\Delta^2}$	

La fig. 1 nous montre l'évolution du spectre en fonction du rapport Δ/J.

$\Delta \gg J$: nous sommes ramenés à un cas particulier de 1*a*.

$\Delta \ll J$: on voit qu'à la limite lorsque $\Delta/J = 0$, c'est-à-dire quand le champ H_0 a été rendu suffisamment petit pour que Δ tende vers zéro, les 2 raies centrales de $\Delta = J$ se confondent et les 2 raies latérales disparaissent. Dans ce cas les 2 spins deviennent équivalents (même fréquence de résonance et $J_{AB} = J_{AB}$) et l'interaction $h \cdot J_{AB} \cdot \vec{I}_A \cdot \vec{I}_B$ tend à être inobservable en accord avec le théorème de GUTOWSKY et al. déjà mentionné.

Cas 2: 3 noyaux non-équivalents. On considère 2 noyaux A et B de la même espèce ayant un déplacement chimique interne $\delta_{AB} = \nu_A - \nu_B$ et un 3^e noyau C d'une autre dont la fréquence de résonance ν_C est très différente de ν_A et ν_B. Ceci s'exprime par la condition

$$|\,\nu_c - \nu_{AB}\,| \gg |\,\nu_A - \nu_B\,| = \delta_{AB} \qquad \text{où} \qquad \nu_{AB} = \frac{\nu_A + \nu_B}{2}. \qquad (9)$$

*

Ce cas étudié par WILLIAMS[12)13)] permet dans certains cas de déterminer le signe relatif des constantes de couplage indirect. L'Hamiltonien s'écrit:

$$H = -h\{\nu_A M_A + \nu_B M_B + \nu_C M_C + J_{AB}\cdot\vec{I}_A\cdot\vec{I}_B + J_{AC}\cdot\vec{I}_A\cdot\vec{I}_C + J_{BC}\cdot\vec{I}_B\cdot\vec{I}_C\} \quad (10)$$

Si δ_{AB} est comparable à J_{AB}, J_{AC} et J_{BC}, ce qui est généralement vrai pour les atomes d'hydrogène et de fluor attachés au cycle du benzène

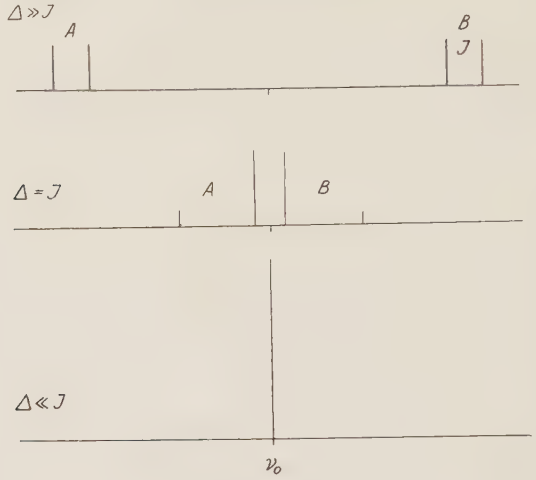


Fig. 1

Spectre de résonance de 2 spins 1/2 A et B en fonction rapport Δ/J.

dont on étudie la résonance à des champs inférieurs à 10.000 Gauss, la condition (9) peut être étendue:

$$|\nu_C - \nu_{AB}| \gg \delta_{AB}, J_{AB}, J_{BC}, J_{AC} \quad (11)$$

et l'analyse mathématique est beaucoup plus simple et plus complète. Les fréquences de transition et leurs intensités relatives sont reportées au tableau II.

On a posé: $J \pm = \frac{1}{2}\left\{J_{AB}^2 + \left[\delta_{AB} \pm \frac{1}{2}(J_{AC} - J_{BC})\right]^2\right\}^{\frac{1}{2}}$

$$H_{23} = -\frac{1}{2}\delta_{AB} - \frac{1}{4}(J_{AC} - J_{BC})$$

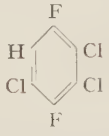
$$H_{67} = -\frac{1}{2}\delta_{AB} + \frac{1}{4}(J_{AC} - J_{BC})$$

Tableau II

Espèce	Fréquence de transition	Trans.	Intensité relative
C	1. $\nu_C - \frac{1}{2}(J_{AC}+J_{BC})$	1,6	1
	2. $\nu_C + (J_+ - J_-)$	2,5	$\left\{\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_+\right)\cdot\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_-\right)+H_{23}\cdot H_{67}\right\}^2$
	3. $\nu_C - (J_+ + J_-)$		$\left\{\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_+\right)^2+H_{23}^2\right\}\cdot\left\{\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_-\right)^2+H_{67}^2\right\}$
	4. $\nu_C + (J_+ + J_-)$	3,4	$\left\{\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_+\right)\cdot H_{23}-\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_-\right)\cdot H_{67}\right\}^2$
	5. $\nu_C - (J_+ - J_-)$		$\left\{\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_+\right)^2+H_{23}^2\right\}\cdot\left\{\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_-\right)^2+H_{67}^2\right\}$
	6. $\nu_C + \frac{1}{2}(J_{AC}+J_{BC})$		
A et B	1. $\nu_{AC} - \frac{1}{4}(J_{AC}+J_{BC}) - \frac{J_{AB}}{2}+J_-$	1,3	$\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_-\right)^2$
	2. $\nu_{AC} - \frac{1}{4}(J_{AC}+J_{BC}) - \frac{J_{AB}}{2}-J_-$		$\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_-\right)^2+H_{23}^2$
	3. $\nu_{AC} - \frac{1}{4}(J_{AC}+J_{BC}) + \frac{J_{AB}}{2}-J_-$	2,4	H_{23}^2
	4. $\nu_{AC} - \frac{1}{4}(J_{AC}+J_{BC}) + \frac{J_{AB}}{2}+J_-$		$\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_-\right)^2+H_{23}^2$
	5. $\nu_{AC} + \frac{1}{4}(J_{AC}+J_{BC}) - \frac{J_{AB}}{2}+J_+$	5,7	$\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_+\right)^2$
	6. $\nu_{AC} + \frac{1}{4}(J_{AC}+J_{BC}) - \frac{J_{AB}}{2}-J_+$		$\left(\frac{J_{AB}}{2}+J_+\right)^2+H_{67}^2$
	7. $\nu_{AC} + \frac{1}{4}(J_{AC}+J_{BC}) + \frac{J_{AB}}{2}-J_+$	6,8	H_{67}^2
	8. $\nu_{AC} + \frac{1}{4}(J_{AC}+J_{BC}) + \frac{J_{AB}}{2}+J_+$		$\left(\frac{J_{AB}}{2}+J\right)^2+H_{67}^2$

3. *Application: spectre du 1,4-difluoro-2,3,5-trichlorobenzène*

La molécule se représente schématiquement par:



Les trois noyaux non-équivalents qui ont des couplages indirects sont les deux F^{19} occupant les positions 1 et 4 et le H^1. Conformément à la notation utilisée, F_1 s'identifie à A, F_4 à B et H à C:

$$J_{AB} = J_{FF} \quad J_{AC} = J_0^{HF} \quad J_{BC} = J_m^{HF} \quad \text{et} \quad \delta_{AB} = \delta_{FF}$$

m correspond à la position meta-, o à la position ortho- de l'hydrogène par rapport aux atomes de fluor.

a) *Spectres à 4165 Gauss*[12–14]).

Williams, à l'aide des spectres de l'hydrogène et du fluor (fig. 2) a déterminé les valeurs suivantes:

$$J_{FF} = 10{,}0\ c/s \quad J_0^{HF} = 8{,}4\ c/s \quad J_m^{HF} = 6{,}3\ c/s \quad \text{et} \quad \delta_{FF} = 24{,}8\ c/s$$

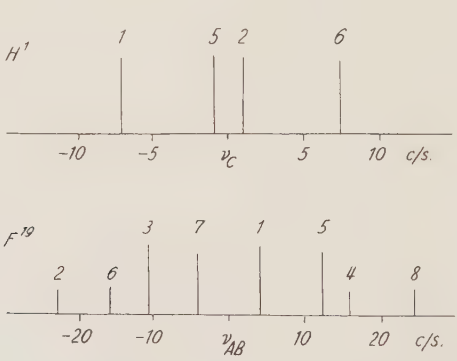


Fig. 2

Résonance de H^1 et F^{19} du difluoro-trichlorobenzène à 4165 Gauss.

Le spectre de l'hydrogène ne présente que 4 raies de résonance car les transitions 3 et 4 ont une trop faible intensité pour être observées. L'écart entre les transitions 1 et 6 donne la valeur $(J_0^{HF} + J_m^{HF}) = 14{,}7$ c/s et les conditions expérimentales sont telles que l'écart des transitions 2 et 3 vaut approximativement $(J_0^{HF} - J_m^{HF}) = 2{,}1$ c/s. On peut déterminer les valeurs de J_0^{HF} et de J_m^{HF} et voir qu'elles ont le même signe.

Quant au spectre du fluor, il est composé de 8 raies de résonance. Il permet, lui, d'obtenir J_{FF} et δ_{FF} et de confirmer les valeurs de J_0^{HF} et de J_m^{HF}.

b) *Spectre à 35 Gauss.*

A 35 Gauss le déplacement chimique interne prend la valeur δ_{FF} - 0,2 c/s. La condition (11) reste valable et on peut introduire dans les expressions du tableau II les valeurs de J_{AB}, J_{AC} et J_{BC} données par WILLIAMS ainsi que $\delta_{AB} = 0{,}2$ c/s. Le spectre de l'hydrogène (fig. 3)

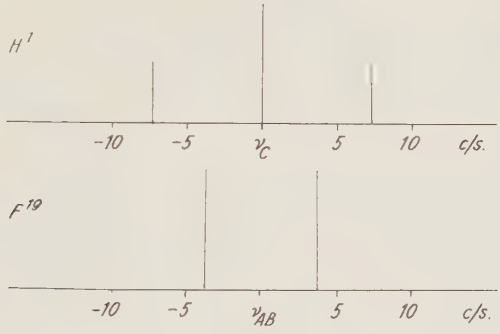


Fig. 3

Résonance de H^1 et F^{19} du difluoro-trichlorobenzène à 35 Gauss.

présente l'aspect d'un triplet dont les raies ont une intensité relative 1–2–1 et un écart équidistant de $\frac{1}{2}(J_0^{HF} + J_m^{HF})$ car les transitions 2 et 5 sont quasiment confondues. En effet elles ne sont séparées que par 0,03 c/s, valeur inférieure à la résolution des spectromètres de R.M.N.

Les 8 raies de résonance du fluor observées à 4165 Gauss se transforment à 35 Gauss en un doublet. D'une part les transitions 2, 4, 6, 8 ont des intensités relatives trop faibles pour en tenir compte (moins de 1% de l'intensité des transitions 1, 3, 5, 7 qui sont toutes presque égales) et d'autre part ces transitions **1**, 3, 5, 7 tendent à se confondre par paires: 1 et 3 ne sont séparées que par 0,03 c/s et 5 et 7 par 0,06 c/s. L'écart entre les 2 raies du «doublet» est comme pour l'hydrogène donné par l'expression $\frac{1}{2}(J_0^{HF} + J_m^{HF})$.

Nous voyons qu'à cette valeur de champ H_0 on peut dire que les 2 spins F sont semblables et que le système se comporte comme si l'on avait affaire à 2 groupes de noyaux équivalents (cas 1*a*): 2 F et 1 H ayant une constante de couplage indirect définie par $\frac{1}{2}(J_{AC} + J_{BC})$. Seule la mesure de cette constante peut se faire, sans savoir quelles valeurs et quels signes relatifs attribuer à J_{AC} et J_{BC}.

4. *Intérêt des champs faibles dans l'étude des structures*

Les exemples du paragraphe précédent nous montrent que si l'on veut observer une structure due à un couplage indirect entre deux noyaux A et B, il faut que la condition

$$\Delta = | \nu_A - \nu_B | \gg \text{ ou } \sim J_{AB} \tag{12}$$

soit remplie, sinon l'interaction est rendue inobservable. Comme $\nu_A = \gamma_A \cdot H_0/2\pi$, il faut opérer à une fréquence grande ou comparable à

$$\frac{(\gamma_A+\gamma_B)}{2\,(\gamma_A-\gamma_B)} \cdot J_{AB} \tag{13}$$

Envisageons les deux cas suivants:

1. Les noyaux sont différents. Les rapports gyromagnétiques peuvent facilement varier d'un facteur 2 ou 3 et pour des valeurs de couplages indirects moyennes, les deux structures sont encore très séparées à des champs de l'ordre de 10 Gauss.

2. Les noyaux sont identiques et se trouvent en des sites différents. Le déplacement chimique interne s'identifie alors à Δ. Comme la valeur de $\delta_{AB}/\nu_{AB} = 2\,(\gamma_A - \gamma_B)/C\,\gamma_A + \gamma_B)$ est habituellement comprise entre 10^{-4} et 10^{-6} et que les constantes J_{AB} sont de l'ordre de 10 c/s (les noyaux de la même espèce qui ont une interaction indirecte spin-spin ne sont très souvent pas directement liés dans la molécule et les valeurs de J sont faibles), on opère généralement à des fréquences de résonance telles que le champ H_0 soit compris entre 10^3 et 10^4 Gauss pour séparer les spectres des deux noyaux.

Bien que le choix du domaine de champ magnétique (50–15 Gauss) que nous nous sommes assignés ne nous permette pas d'observer des structures dues à des couplages indirects entre noyaux de la même espèce, cette gamme de champ magnétique est intéressante:

a) Tout d'abord, pour prouver que le couplage indirect est une interaction indépendante du champ appliqué, il faut faire varier H_0 dans de très larges mesures tout en respectant la condition $| \nu_A - \nu_B | \gg J_{AB}$. C'est ce qu'ont fait Quinn et Brown[15]). Ils ont repris à 550–165 Gauss les expériences faites par Gutowsky et al.[9]) à 4180 et 6365 Gauss et ont trouvé des valeurs identiques aux leurs à l'exception de celle de la liaison F-P de $F_2PO(OH)$. Ils ont remarqué que l'écart du doublet de la résonance de F^{19} produit par le spin $\frac{1}{2}$ du phosphore diminuait avec le champ magnétique H_0 et à 237 Gauss ils n'ont obtenu plus qu'une seule raie de résonance, laissant supposer que le couplage indirect n'est pas totalement indépendant de H_0. Il est alors intéressant de reprendre le problème à des valeurs de champ 10 fois inférieures (50-15 Gauss) pour voir si l'on peut attribuer la disparition du couplage observée à une influence de H_0.

b) La résonance dans les champs faibles peut être un complément à l'étude de certaines structures. Pour le 1,4-difluoro-2,3,5-trichlorobenzène nous avons vu que les structures se simplifient mais que seule la valeur de $(J_0^{HF} + J_m^{HF})$ peut être mesurée. Cette mesure peut cependant être utile pour des spectres plus compliqués obtenus aux champs forts car la détermination des constantes sera ensuite simplifiée. D'autre part de telles conditions expérimentales peuvent apporter une contribution à des cas complexes comme celui du fluorobenzène (C_6H_5F) que nous traiterons au chapitre IV.

c) Du point de vue expérimental la question de la sensibilité présente un très sérieux handicap mais il est possible d'y remédier en augmentant dans des proportions raisonnables le volume de l'échantillon (remarquons qu'aux fréquences de 200–50 Kc/s la bobine de réception doit occuper un volume de 5 à 20 cm³ pour avoir une surtension favorable). Ainsi avec un échantillon de 15 cm³ à 150 Kc/s on peut obtenir la résonance du proton dans l'eau avec un rapport signal sur bruit de l'ordre de 1000.

Cette sensibilité permet alors d'étudier des couplages indirects entre noyaux différents dont la concentration est convenable et d'obtenir des valeurs de J avec une grande précision. Ceci, en prenant beaucoup moins de précautions quant aux stabilités du champ magnétique statique H_0 et de la fréquence d'émission ν_0 que dans les champs forts puisque l'erreur sur la mesure de J est due aux fluctuations ΔH_0 et $\Delta \nu_0$ pendant la durée de la mesure. En d'autres termes, à stabilité égale définie par $\Delta H_0/H_0$ et $\Delta \nu_0/\nu_0$, la précision de la mesure de J croit quand H_0 et ν_0 diminuent.

Par ailleurs, si l'on veut travailler à 35 Gauss avec un pouvoir de résolution identique à celui d'un champ de 7000 Gauss, la stabilité nécessaire est 200 fois plus faible. Ceci exige donc un appareillage beaucoup plus simple (le champ magnétique directeur H_0 est produit par un système de bobines à air). A 35 Gauss, nous avons obtenu une résolution de 0,6 mGauss (soit 3 c/s) avec un échantillon tournant d'un volume de 5 cm³ sans requérir une stabilité supérieure à 3.10^{-6} en champ et en fréquence pendant la durée du passage à la résonance.

III. Appareillage: Spectromètres à 200–50 Kc/s

Nous avons construit successivement deux spectromètres pour l'étude des structures dans les liquides, le premier étant un dispositif pour des mesures requérant de la sensibilité, le deuxième, un dispositif adapté à des problèmes nécessitant une haute résolution.

A. *Spectromètre à haute sensibilité*

Nous avons fait nos premières observations avec le spectromètre réalisé en grande partie avec la collaboration de BEELER. Ce spectromètre

lui avait permis de faire l'étude des formes de courbes en résonance paramagnétique électronique dans des champs très faibles[16]). Seule la production du champ magnétique directeur étant différente (système de bobines utilisé aussi dans le deuxième dispositif), nous ne redécrirons pas

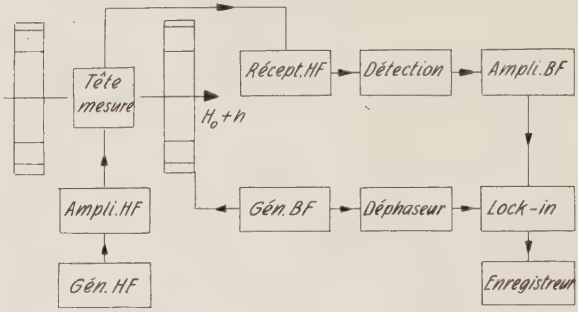


Fig. 4

Schéma de principe du spectromètre avec modulation B. F. du champ H_0.

en détail ce spectromètre (fig. 4). Nous nous bornerons à en mentionner les caractéristiques pour la résonance nucléaire:

- Plage de fréquence: 200–50 Kc/s.
- Tête de mesure en système de Bloch.
- Volume de l'échantillon: 15 cm³.
- Modulation du champ H_0 basse fréquence (20–70 c/s) présentant l'avantage d'une grande stabilité du zéro mais avec la complication des fréquences latérales.
- Rapport signal sur bruit de l'ordre de 1000 pour le proton dans H_2O à 150 Kc/s.

Par rapport au second dispositif construit à d'autres fins, celui-ci est plus apte à l'étude des couplages indirects entre noyaux différents ayant des J compris entre 400 et 1000 c/s (couplages H–P et F–P par exemple), cas où il faut faire des enregistrements rapides pour des raisons de stabilité, ce qui est possible à cause de la modulation BF et de la largeur de raie relativement grande.

B. *Spectromètre à haute résolution à 150 Kc/s*

1. *Principe*

Pour améliorer la résolution avec un champ magnétique produit par des bobines en position d'Helmholtz, trois possibilités se présentent:

a) réduire les dimensions de la bobine réceptrice dont le volume occupe alors une zone de plus en plus homogène du champ H_0;

b) ou bien, ce qui revient au même, augmenter les dimensions des bobines de champ H_0;

c) tout en réduisant le volume de l'échantillon dans des proportions convenables (5 cm^3), le faire tourner. Cette méthode est couramment appliquée dans les champs forts où toutefois le volume de substance ne dépasse pas quelques mm^3.

La première solution diminuant par trop la sensibilité et la deuxième présentant trop de difficultés mécaniques, nous avons préféré la troisième: réaliser la rotation de l'échantillon malgré la grandeur de son volume en gardant des normes courantes pour les dimensions de la bobine réceptrice et des bobines de champ. Le bruit microphonique dû à la rotation de la turbine ne permettant pas de travailler en modulant en amplitude le champ H_0, nous avons construit un dispositif dont le principe (voir fig. 5) est presque analogue à celui réalisé par ARNOLD[17]) dans les champs forts.

L'observation de la résonance se fait par variation continue et lente de H_0. Le signal induit dans la bobine réceptrice à la fréquence de résonance se superpose à la tension de fuite. On amplifie à 150 Kc/s et l'on

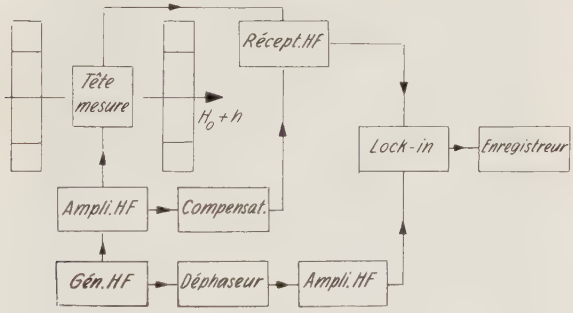


Fig. 5

Schéma de principe d'un spectromètre sans modulation BF.

enregistre le signal après détection de phase, la phase de la tension de référence permettant d'obtenir soit la composante de l'absorption, soit celle de la dispersion. L'amplitude de la tension de fuite (leakage) inévitable est d'abord réduite au minimum par déplacement mécanique de la position des bobines d'émission puis compensée électroniquement par réinjection à l'entrée du 2e étage du récepteur pour éviter de saturer les derniers étages d'amplification. Il est très important de s'assurer de la stabilité de la tension de fuite résiduelle parce qu'elle est mélangée au signal. Cette stabilité définit la position du zéro de l'enregistrement. L'importance de son effet diminue quand la résolution augmente: plus la résolution est bonne, plus on réduit l'amplitude du champ de radiofréquence H_1, donc celle de la tension de fuite.

2. *Production du champ magnétique directeur H_0*

Pour produire le champ H_0 nous avons réalisé des bobines en position d'Helmholtz (fig. 6) qui ont les caractéristiques suivantes:

- Diamètre moyen des bobines: 440 mm.
- Surface de bobinage: 36 mm de largeur, 37 mm de hauteur.
- Diamètre du fil de cuivre: 1,5 mm.
- Nombre total des spires: 1120.
- Résistance du système: 15,4 Ω.
- Valeur du champ magnétique: 22,70 Gauss par Ampère.
- Dissipation à 35 Gauss: 36 Watts.

Nous alimentons les bobines par une batterie de 32 V d'une capacité de 1200 A/h. Le réglage du courant se fait à l'aide d'un système de résistances montées en série avec les bobines.

Le choix de la surface de bobinage ainsi que celui du diamètre du fil utilisé ont été faits de façon à ce que pour le champ H_0 maximum désiré:

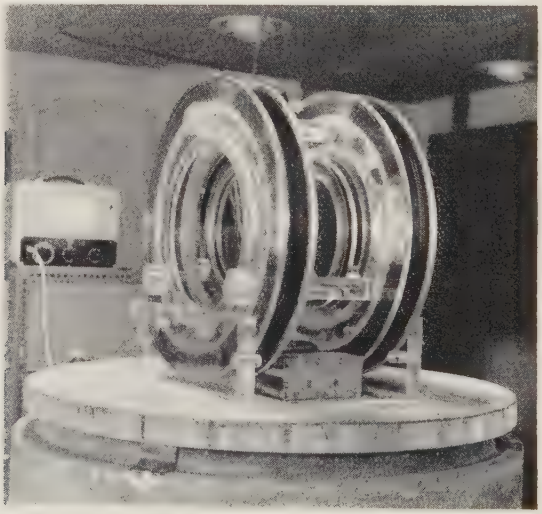


Fig. 6
Les bobines en position d'Helmholtz.

a) la dissipation, inversement proportionnelle à la surface de bobinage, soit suffisamment faible pour éviter le problème du refroidissement;

b) la dérive occasionnée par le courant de décharge $I_{\text{max.}}$ de la batterie soit inférieur à la stabilité du champ désirée;

c) la condition $I_{\text{max.}}\, R < 32$ V (tension de la batterie) soit remplie.

En laissant les bobines sous tension de façon permanente, on obtient après 6 heures de fonctionnement une dérive de 10^{-5} Gauss par seconde

due à l'échauffement des bobines qui tendent à l'équilibre thermique. Dans cette valeur est incluse la dérive occasionnée par la décharge des batteries dont l'effet calculé est 5 fois plus faible.

Homogénéité du champ H_0

En introduisant nos valeurs dans les expressions calculées par BÉNÉ[18]) donnant la valeur du champ magnétique au centre de symétrie, on obtient pour un échantillon de forme cylindrique de 22 mm de diamètre et 14 mm de hauteur une inhomogénéité relative de:

$$\frac{\Delta H_0}{H_0} \cong 3.10^{-5}$$

donc à 35 Gauss $\rightarrow$ 1 mGauss sans faire tourner l'échantillon. Expérimentalement elle est 3 fois plus grande. Ceci est dû aux faits que pratiquement la surface de bobinage des bobines de champ n'est pas homogène, que le bobinage n'est pas parfaitement régulier et que la relation d'HELMHOLTZ – écart moyen des bobines égal au rayon moyen – n'est pas réalisée à la précision voulue.

Des essais nous permettent de conclure que la cause de cette inhomogénéité accrue n'est pas due à des impuretés de fer dans le cuivre.

Balayage du champ H_0

Le balayage lent h du champ directeur H_0 pour passer à la résonance se fait par variation d'un courant à travers un système de bobines concentriques aux bobines de champ H_0. La variation du courant est produite à l'aide d'un potentiomètre constitué de 2 cylindres entrainés par un moteur, sur lesquels s'enroule et se déroule un fil résistant avec un frotteur mobile. Le potentiomètre est monté en diviseur de tension, il alimente les bobines de balayage au travers d'une résistance réglable pour faire varier la plage d'investigation de h autour de H_0. Ce montage assure une variation très linéaire du champ d'appoint h qui s'obtient avec précision par conversion du courant de balayage mesuré.

$$\left(\frac{dh}{dt}\right) = \pm 0{,}1\% \text{ pour balayer } 20\,\text{mGauss en } 2 \text{ minutes}.$$

3. *Echantillon tournant et ses effets de modulation*

a) Rétrécissement de la raie de résonance et modulation de la fréquence de LARMOR.

On sait[17])[19]) que pour obtenir un rétrécissement de la raie de résonance il faut soumettre chaque élément de volume de l'échantillon en un temps $2\pi/\Omega$ à toute une série de champs compris entre $H_0 + \delta H_0$ et $H_0 - \delta H_0$,

les δH_0 caractérisant l'inhomogénéité de H_0. L'échantillon se comporte alors sensiblement comme s'il était plongé dans un champ uniforme H_0. La condition du succès s'exprime par

$$\frac{1}{2} \cdot \frac{\delta\omega_0}{\Omega} \ll 1 \tag{14}$$

avec $\delta\omega_0 = \gamma \cdot \delta H_0$. Mais alors le champ H_0 est modulé en fréquence et il apparaît un spectre de raies latérales correspondant aux fréquences $\omega_0 \pm n\Omega$ ($n = 0, 1, 2 \ldots n$) d'amplitudes variables. La largeur de raie persistante est due à $\overline{\delta H_0}$ le long de l'axe de rotation.

Pour un champ magnétique à air produit par des bobines, le problème est beaucoup plus complexe, car en plus des inhomogénéités réparties dans le volume de l'échantillon (géométrie imparfaite des bobines) il se superpose des gradients de champ bien définis suivant chaque direction en raison de la géométrie elle-même des bobines. Il n'est alors plus possible de considérer la condition précédente pour déterminer la vitesse de rotation nécessaire à l'échantillon. Il est aussi trop compliqué de faire une analyse mathématique du problème comme l'a fait WILLIAMS[20]) pour déterminer l'amplitude des raies latérales dans le cas d'un gradient linéaire du champ dans le plan de rotation.

Tableau III

Amplitude des raies latérales en fonction de la vitesse de rotation de l'échantillon.

Vit. de rotat. en tours/minute	Amplitudes		
	A_0	A_1	A_2
1540	1,00	0,10	—
2250	1,00	0,06	—
2820	1,00	0,04	—

Expérimentalement nous observons un rétrécissement de la raie de 3,0 à 0,6 mGauss (à 35 Gauss) à partir d'une vitesse de rotation de 1000 tours/min avec apparition de raies latérales à $\omega_0 \pm n \cdot \Omega$. En prenant une valeur de δH_0 inférieure à 3 mGauss (qui correspond à tout le volume de l'échantillon et non à l'inhomogénéité maximale dans chaque plan de rotation) la condition (14) est partiellement remplie: $\frac{1}{2} \cdot \delta\omega_0/\Omega \cong \frac{1}{4}$. Nous donnons au tableau III l'amplitude des raies latérales en fonction de la vitesse de rotation.

En diminuant la hauteur de l'échantillon on obtient une raie légèrement plus fine mais on est limité par la forme que doit avoir la bobine pour que la surtension soit favorable.

b) Problèmes mécaniques de la rotation.

Pour faire tourner un échantillon d'un tel volume (5 cm^3 soit environ 1000 fois plus grand que dans les champs forts), il faut une turbine de masse non négligeable et ceci présente plusieurs difficultés.

La turbine est entrainée par air comprimé et construite en nylon. Les paliers sont en teflon. Elle peut tourner régulièrement à 2500 tours/min de façon stable durant plusieurs heures sans dommage.

Comme il faut un assez gros débit d'air comprimé, nous avons enfermé la turbine dans un bloc de plexiglas pour éviter les courants d'air à proximité des bobines de champ magnétique (risques de fluctuations

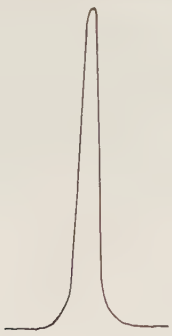


Fig. 7

Enregistrement de l'absorption à 150 Kc/s du proton dans une solution $N/2000$ de nitrate ferrique dans H_2O. 1/2 largeur = 0,6 mGauss.

thermiques). Le palier supérieur de la turbine assure l'étanchéité et deux conduits d'échappement permettent l'évacuation de l'air en dehors du laboratoire.

Nous avons résolu le problème des vibrations en isolant mécaniquement la turbine du reste de l'installation de la façon suivante: la tête de mesure est fixée aux bobines de champ qui sont montées sur un tuyau en béton reposant sur le sol par l'intermédiaire de feuilles de plomb. La turbine, elle, est fixée sur un autre tuyau de béton disposé à l'intérieur du premier et rempli de sable pour augmenter son inertie. Le porte-échantillon solidaire de la turbine (voir fig. 8) vient se loger dans la tête de réception. La turbine a son support réglable pour assurer le centrage de l'échantillon.

4. *Partie électronique* (schéma de principe, fig. 5)

Dans ce paragraphe nous ne décrirons que les éléments nouveaux par rapport au premier dispositif mentionné (chap. III A).

Rappelons que le spectromètre est piloté par un générateur HF commercial, type Férisol, dont la stabilité pendant la durée d'un passage

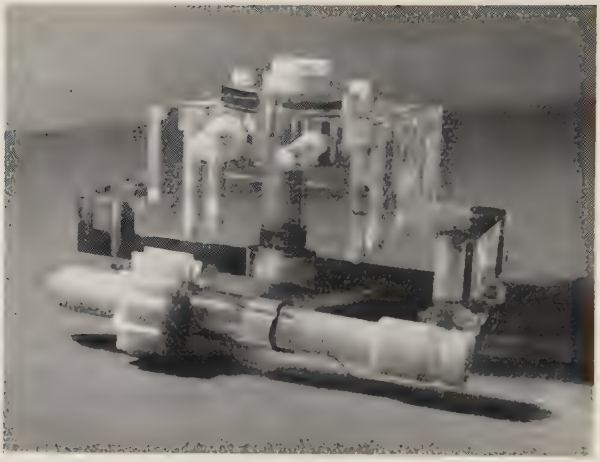


Fig. 8
Turbine avec son support pour la rotation de l'échantillon.

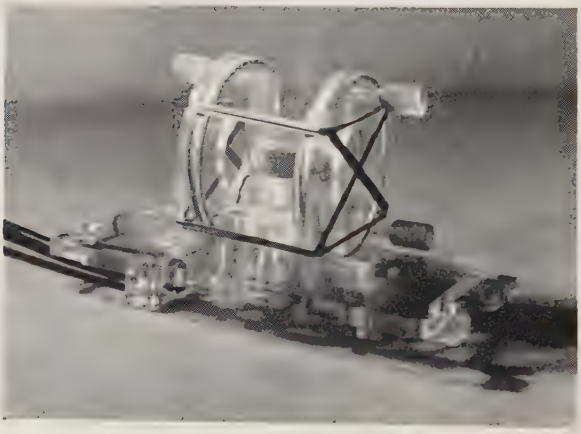


Fig. 9
Tête de mesure suivant le système de Bloch.

à la résonance est d'environ 3.10^{-6}. Les bobines d'émission de la tête de mesure ont été conservées. Elles sont montées dans un circuit résonant comme résistance de plaque d'un étage d'amplification situé à la sortie du générateur. Cet étage d'amplification permet de découpler les tensions d'émission et de référence. Ayant réduit le volume de l'échantillon, nous avons une nouvelle bobine de réception dont la surtension est de 150 à 150 Kc/s. Elle est composée de 6 couches de fil divisé de 20 tours chacune et son coefficient de remplissage est de 0,62 malgré la rotation de l'échantillon. La tension de fuite étant réduite à 10^{-4} mécaniquement en réglant les positions des bobines émettrices à l'aide de 3 vis calantes (fig. 9), pour des raies fines, il n'est pas nécessaire d'éliminer la tension résiduelle car elle est de l'ordre de 10 fois celle du signal environ.

Cependant pour des raies plus larges, il est nécessaire de compenser la tension résiduelle. La tension d'émission est déphasée, amplifiée et réinjectée dans la résistance de grille du 2e étage suivant le schéma de la fig. 10.

La détection se faisant à la fréquence de résonance, un amplificateur à 150 Kc/s supplémentaire est nécessaire. Celui-ci est réalisé à l'aide de

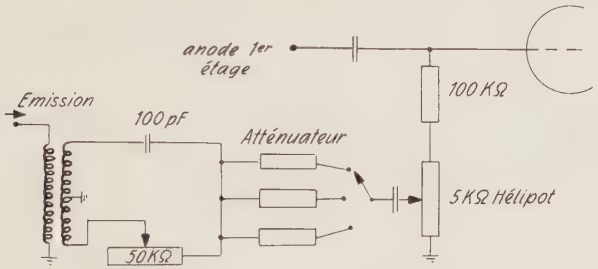


Fig. 10
Compensation électronique de la tension de fuite.

deux tubes 6 AK 5 montés en triodes avec un circuit résonant dans la première plaque et un filtre passe-haut à 5 éléments à l'entrée. Le facteur d'amplification total à disposition est de 10^5.

Le détecteur de phase que nous avons utilisé est un de ceux proposés par MANUS[21]) dans sa thèse. C'est un détecteur de résonance réalisé par deux tubes 6 L 7 montés symétriquement dont les grilles N° 2 sont attaquées par la tension de référence à 150 Kc/s.

Le réglage de la phase de référence étant très sensible pour obtenir des signaux d'absorption ou de dispersion purs, nous avons réalisé un déphaseur basé sur le principe des moteurs selsyn (fig. 11). Le réglage peut se faire sur 200° avec 1° de précision. L'amplitude varie de $\pm$ 5% dans tout ce domaine. 2 systèmes L_1 et L_2 (de 2 bobines chacun) disposés à angle droit dont la tension est égale en amplitude mais déphasée de 90°

produisent un champ tournant. Au centre du système est disposée une bobine L_3 dont l'orientation détermine la phase de la tension induite. Les dimensions de L_3 doivent être petites par rapport à celles de L_1 et L_2 pour que l'amplitude ne varie pas trop suivant sa position.

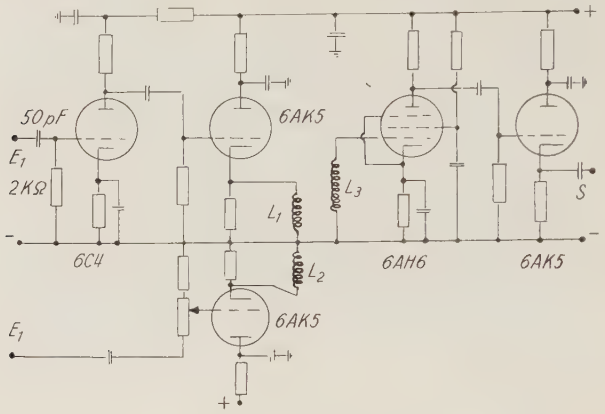


Fig. 11

Schéma du déphaseur électronique donnant la phase de référence du détecteur de phase.

Le déphasage de 90° de tension entre L_1 et L_2 est obtenu en différenciant la tension à l'entrée du tube 6 C 4. Celui-ci sert à compenser la perte de tension due à la différentiation. L_1 et L_2 sont commandées par cathodynes car elles ont une faible impédance.

IV. Résultats expérimentaux

A. *Observation des couplages indirects dans les champs faibles*

Tous les spectres que nous étudions dans cette partie A sont dus à des couplages indirects entre deux groupes de noyaux équivalents et la condition (5): $| \nu_A - \nu_B | \gg J_{AB}$ est satisfaite pour toutes les valeurs de champ magnétique H_0 envisagées. Nous pouvons donc assimiler ces structures au cas 1 *a* du chap. II, 2. Contrairement à la définition de J que nous avons énoncée, nous parlerons d'écarts entre composantes des multiplets en valeur de champ magnétique et non en cycles/sec, comme dans les articles auxquels nous nous référons.

Gutowsky et ses collaborateurs[5][9]) ont été les premiers à prouver que le couplage indirect entre spins est indépendant du champ magnétique extérieur H_0 on obtenant des valeurs de J identiques à 6365 et 4180 Gauss pour toute une série de liaisons du type P^{31}–F^{19}, P^{31}–H^1 et F^{19}–F^{19}.

Quinn et Brown[15]) ont de leur côté réétudié ces liaisons à des valeurs de champ comprises entre 550 et 165 Gauss, et ont mesuré des valeurs de J similaires, à l'exception de celle de la liaison F–P de $F_2PO(OH)$. A 550 Gauss, pour la résonance du fluor, ils ont obtenu comme Gutowsky un doublet dû aux 2 orientations possibles du spin $\frac{1}{2}$ de P^{31} avec un écart de 240 mGauss. Puis au fur et à mesure que diminuait le champ H_0, ils ont observé un rapprochement des raies du doublet et à 237 Gauss ils n'ont plus vu qu'une seule raie de résonance fortement élargie (largeur d'environ 250 mGauss), laissant ainsi supposer que l'interaction indirecte entre spins nucléaires n'est pas totalement indépendante du champ H_0 appliqué.

Ceci nous a incité à reprendre le problème à 35 et 15 Gauss et pour ce faire, nous avons utilisé le spectromètre à modulation BF décrit



Fig. 12

Résonance de H^1 à 150 Kc/s avec couplage indirect H–P de $H_2PO(ONa)$ en solution dans H_2O.

au chap. III A. Nous réglons nos phases de façon à obtenir une forme de courbe que Rocard[22]) a défini comme étant la «dispersion» du signal en phase avec l'onde porteuse. Avec une fréquence de modulation de 23 c/s nous avons une inhomogénéité «apparente» de 3 mGauss à 35 Gauss (fig. 12).

Le tableau IV donne nos valeurs obtenues en regard de celles de Gutowsky et Brown.

Tableau IV

Valeurs comparées des écarts entre les composantes des multiplets dus au couplage indirect pour les différents champs H_0 appliqués.

Substance	Rés.	Liaison	Ecarts en mGauss			
			Gutowsky 6365 Gauss	Brown 165 Gauss	Roux 35 Gauss	Roux 15 Gauss
1 $F_2PO(OH)$	F	F–P	244	singlet	245 ± 4	—
2 $FPO(OH)_2$	F	F–P	238	240	241 ± 4	—
3 $FPO(ONa)_2$	F	F–P	195*	—	215 ± 2	—
4 HPF_6	F	F–P	178	177	178 ± 2	177 ± 2
5 $HPO(OH)_2$	H	H–P	166	—	165 ± 1	164 ± 2
6 $H_2PO(OH)$	H	H–P	137	133	137 ± 1	—

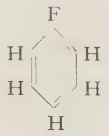
* Shoolery[25]) a obtenu à 7500 Gauss un écart de 215 mGauss en accord avec nos mesures.

Nous pouvons conclure qu'à 15 Gauss encore la valeur de J pour les substances envisagées est indépendante de H_0. Récemment Rocard[23]) a mesuré à 2 Gauss un écart de 122 ± 2 mGauss pour le doublet de la résonance de H de $H_2PO(ONa)$.

Pour la résonance F de $F_2PO(OH)$, nous avons trouvé comme Gutowsky un doublet avec un écart analogue, ce qui prouve que la raie unique observée par Quinn et Brown ne peut pas s'expliquer en ne tenant compte que de la variation du champ H_0[24]).

B. *Résonance de H du fluorobenzène à 35 Gauss*

Si l'on considère la molécule de fluorobenzène



la théorie permet de prévoir des structures très complexes pour les résonances de H^1 et F^{19} car les 5 spins des protons peuvent avoir un déplacement chimique interne et un couplage indirect avec F^{19} différents suivant qu'ils sont en position para, meta ou ortho comme le montrent d'autres exemples du même genre.

En fait, Gutowsky, Meyer et McCall[26]), Holm[13])[27]) et Baker[28]) ont observé aux champs forts pour la résonance de H^1 un doublet dont les composantes sont d'égale intensité, séparées par un écart de 6,5 c/s. Le

spectre de F^{19} est formé par un sextet avec le même écart de 6,5 c/s entre chaque composante; les intensités relatives sont environ dans le rapport 1–5–10–10–5–1. Suivant le cas 1*a* du chap. II, 2, ces observations conduisent à dire que le spin du fluor est également couplé aux 5 spins H^1 chimiquement équivalents.

Baker en a tiré la conclusion que cette interaction indirecte entre fluor et hydrogènes est due aux électrons de liaison π du cycle benzènique puisque le fluor a apparemment le même couplage avec les 5 H^1 (les 6 électrons π des liaisons doubles entre atomes de carbone ne sont pas localisés, mais forment un nuage électronique symétriquement au plan du cycle).

Williams[14]) pense qu'il ne faut pas uniquement envisager les électrons de liaison π comme éléments de couplage pour expliquer le spectre du fluorobenzène. Il s'appuie sur les arguments suivants:

a) d'une part, les couplages J entre les protons et le fluor liés au cycle du benzène varient suivant la position qu'occupent les H par rapport à F (voir le cas du difluorotrichlorobenzène traité au chap. II);

b) d'autre part, s'il y a d'autres spins en jeu, bien que le couplage entre spins équivalents soit inobservable (comme l'ont montré Gutowsky, McNeill et Slichter), de tels couplages entre spins presque équivalents peuvent avoir un effet sur les spectres observés.

Dans le cas du fluorobenzène, si le fluor paraît également couplé aux 5 spins des H^1, c'est comme l'explique Williams, parce que le couplage indirect entre 2 protons est plus grand que leur «non-équivalence». Cette non-équivalence est donnée par l'expression suivante:

$$\delta_{H_1H_2} \pm \frac{1}{2}\,(J^{H_1F} - J^{H_2F})$$

A titre explicatif, si l'on se reporte à l'exemple mathématiquement plus simple du difluoro-trichlorobenzène, on voit que l'écart $\Delta\nu$ entre les raies 1 et 3 du spectre du fluor est donné par l'expression:

$$\Delta\nu = J_{FF} - \frac{1}{2}\left\{J_{FF}^2 + \left[\delta_{FF} + \frac{1}{2}\left(J_0^{HF} - J_m^{HF}\right)\right]^2\right\}^{\frac{1}{2}} - \frac{1}{2}\left\{J_{FF}^2 + \left[\delta_{FF} - \frac{1}{2}\left(J_0^{HF} - J_m^{HF}\right)\right]^2\right\}^{\frac{1}{2}}$$

et si la condition énoncée par Williams est respectée, les deux raies tendent à se confondre.

Les spectres observés permettent de dire qu'aux champs forts déjà, les déplacements chimiques entre les différents noyaux d'hydrogène sont petits par rapport à leurs valeurs de couplages indirects communs et l'écart mesuré correspond à l'expression:

$$J = \frac{1}{5}\left(J_p^{HF} + 2J_m^{HF} + 2J_0^{HF}\right)$$

A 35 Gauss le déplacement chimique entre protons doit être alors complètement négligeable et la non-équivalence devient encore plus faible.

Nous avons obtenu (fig. 13) à 35 Gauss, comme aux champs forts, un doublet pour la résonance de H^1.

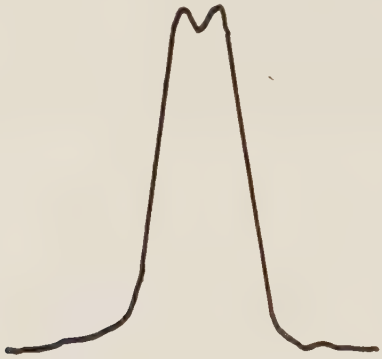


Fig. 13
Résonance de H^1 du fluorobenzène à 35 Gauss.

Bien que les 2 raies ne soient pas parfaitement résolues, on peut faire une correction pour obtenir l'écart de fréquence J. Ceci nous donne la valeur:

$$\boxed{J = 6{,}2 \pm 0{,}5\ c/s}$$

qui concorde bien avec les mesures précédentes.

Cette expérience ne nous permet pas de trancher entre l'explication de Baker et celle de Williams, mais nous montrons que l'idée de Williams, basée sur des données mathématiques quantitatives, paraît particulièrement valable à 35 Gauss.

Cette observation aux champs faibles apporte une donnée supplémentaire au problème et montre que dans certains cas on obtient tout autant d'information avec un dispositif plus simple.

C. *Détermination du degré de dissociation des acides $H^1PO(OH)$ et $HPO(OH)_2$ par mesure des couplages indirects entre H^3 et P^{31}*

1. *Introduction*

Les résonances de H^1 dans $H_2PO(OH)$, $H_2PO(ONa)$, $HPO(OH)_2$ et $HPO(ONa)_2$ donnent chacune un doublet dû aux couplages indirects des H qui ont une liaison avec P, le spin $\frac{1}{2}$ de P^{31} ayant deux orientations possibles par rapport au champ directeur H_0.

Si l'on considère les 4 molécules du tableau V, on voit que l'écart J des doublets varie suivant que l'on a affaire à des groupements du type P–O–H ou P–O–Na.

Tableau V

$H_2PO(OH)$ $J = 137$ mGauss acide hypophosphoreux	$H_2PO(ONa)$ $J = 121$ mGauss hypophosphite de sodium
$HPO(OH)_2$ $J = 166$ mGauss acide phosphoreux	$HPO(ONa)_2$ $J = 133$ mGauss phosphite de sodium

On constate que la constante J de l'acide phosphoreux $HPO(OH)_2$ (1 liaison H–P, 2 liaisons P–O–H) est de 33 mGauss supérieure à celle de son sel de Na en solution correspondant. Celle de l'acide hypophosphoreux $H_2PO(OH)$ est de 16 mGauss supérieure à $H_2PO(ONa)$, soit un écart environ 2 fois plus faible. Cette différence met en évidence l'influence de la modification de la liaison O–H → O–Na sur le couplage indirect H P: dans le premier cas chaque échange de liaison a un effet presque identique à l'échange de la seule liaison $H_2PO(O\ldots)$. Les valeurs données correspondent à des acides en solutions très concentrées (> 1 Mol./litre), donc peu dissociés. Les liaisons O–H étant principalement covalentes et faiblement ioniques, alors que la liaison O–Na, elle, présente un aspect entièrement ionique, le caractère de la liaison apparaît comme déterminant pour la variation de la valeur de J de H–P et H_2–P. En conséquence, on doit s'attendre à ce que la mesure de J nous donne une information sur le degré de dissociation apparent de ces deux acides.

2. *Résultats expérimentaux*

Toutes les mesures sont faites sur la résonance du proton à 35 Gauss. La condition (5) est remplie et l'écart mesuré entre les doublets est encore indépendant du champ H_0.

L'intérêt d'opérer aux champs faibles réside dans le fait que les J mesurés sont obtenus avec une grande précision. En effet, pour un pouvoir de résolution donné du dispositif, la mesure du rapport

$$\frac{2\pi J}{\gamma H_0}$$

est d'autant plus facile à réaliser et d'autant plus précise que γH_0 est plus faible.

Trois genres de mesures vont nous permettre de comprendre le mécanisme de la variation de J.

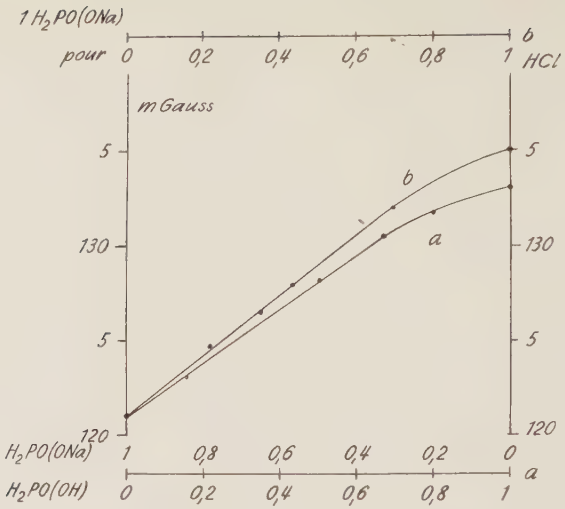


Fig. 14

Variation de la valeur J des couplages indirects des liaisons H–P pour des mélanges a) $H_2PO(ONa)$ et $H_2PO(OH)$, b) $H_2PO(ONa)$ et HCl.

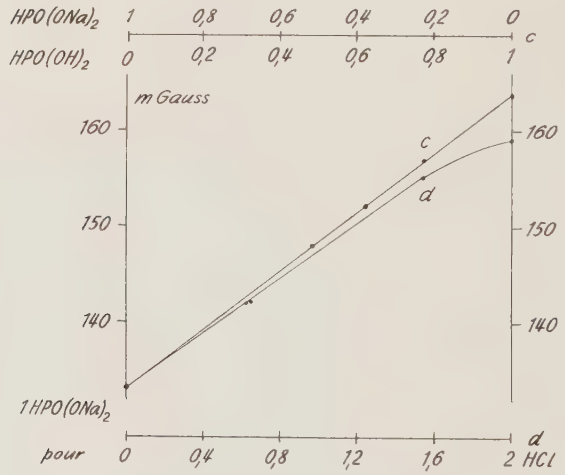


Fig. 15

Variation de la valeur J du couplage indirect de la liaison H–P pour des mélanges c) $HPO(ONa)_2$ et $HPO(OH)_2$, d) $HPO(ONa)_2$ et HCl.

1. En mélangeant en diverses proportions (fig. 14 et 15):

a) $H_2PO(ONa)$ et $H_2PO(OH)$
b) $H_2PO(ONa)$ et HCl
c) $HPO(ONa)_2$ et $HPO(OH)_2$
d) $HPO(ONa)_2$ et HCl

au lieu d'observer 2 doublets d'amplitudes variables, on obtient pour chaque mélange un seul doublet dont la valeur J se situe entre celles du sel et l'acide correspondant. Le doublet unique ne saurait être attribué à une structure non résolue parce que les raies de résonance observées ont toujours la même largeur (ΔH – 3 mGauss correspondant à la résolution de l'appareil). Donc, dans le cas c) lors du mélange 1 $HPO(ONa)_2$ + 1 $HPO(OH)_2$, s'il existait 2 doublets, il y aurait un écart de 16,5 mGauss (166–133/2 mGauss) entre chaque couple de raies et elles seraient bien séparées.

Dans les cas b) et d) il se produit une réaction chimique du type:

$$1\ H_2PO(ONa) + \beta(HCl) \rightarrow \beta\, H_2PO(OH) + (1-\beta)\, H_2PO(ONa) - \beta\, Na^+ + \beta\, Cl^- \quad \text{avec} \quad 0 \leqslant \beta \leqslant 1$$

qui montre la formation d'acide hypophosphoreux, ce qui nous ramène presque aux cas a) et c). Mais comme la concentration des sels et des acides en présence n'est pas la même, les courbes b) et d) ne coïncident pas avec a) et c). Les mélanges de plus forte concentration ont leurs points alignés sur les courbes de plus forte pente.

2. En étudiant la valeur de J de l'acide seul, en fonction de sa concentration, on voit aussi (fig. 16) que J croit avec la concentration. Dans la fig. 16, on considère les valeurs de $J_{sel} = J_{ionique}$ comme celles des acides infiniment dilués (liaisons totalement ioniques) soit 121,1 mGauss pour $H_2PO(OH)$ et 133,0 mGauss pour $HPO(OH)_2$ et l'on porte ($J_{Mol.} - J_{ion.}$) en fonction de la molarité.

3. En ajoutant HCl à $H_2PO(OH)$ en concentration 6,1 Mol. (adjonction de 1 HCl par $H_2PO(OH)$), la valeur de J passe de 133,0 à 137,6 mGauss. En opérant de même avec $HPO(OH)_2$ en concentration 10,0 Mol., on a un accroissement de 163,9 à 165,3 mGauss.

3. *Discussion et conclusions*

Les mesures 1. et 2. du paragraphe 2 montrent l'influence de la concentration sur la valeur de J. Bien que la loi d'Ostwald relative à un équilibre du genre

$$H_2PO(OH) \rightleftharpoons H^+ + H_2POO^- \qquad (15)$$

ne soit plus valable pour des concentrations fortes, en règle générale, la dissociation diminue quand la concentration croît. L'accroissement de J

observé quand la dissociation diminue est en accord avec le contenu de 1 qui montre que la liaison covalente augmente la valeur de J.

La variation de J par addition de HCl dans les 2 acides a la même cause: l'adjonction de H^+ diminue la dissociation de $H_2PO(OH)$ dans l'équilibre (15) suivant le principe de Le Châtelier. Il est intéressant de remarquer que les valeurs données par Gutowsky[9]) pour ces 2 acides

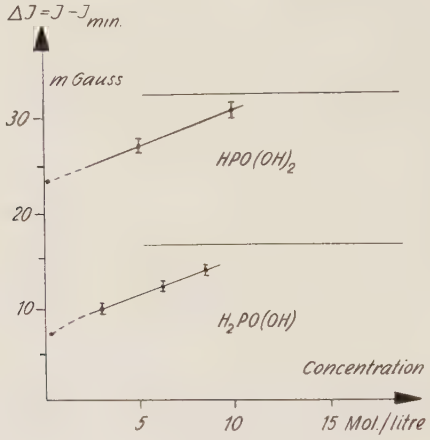


Fig. 16

Variation de la valeur J du couplage indirect des liaisons H–P des acides $H_2PO(OH)$ et $HPO(OH)_2$ en fonction de leurs concentrations.

(voir tableau IV) correspondent à des acides très concentrés ($>$ 10 Mol. dans les deux cas suivant la fig. 16).

La présence d'un doublet unique dans tous les cas et la variation presque linéaire entre $J_{\text{min.}}$ (liaison O– ionique) et $J_{\text{max.}}$ liaison O– covalente) lors d'un mélange sel-acide s'expliquent par un échange rapide des H entre les liaisons covalentes et ioniques par l'intermédiaire ou non des protons des molécules d'eau et des ions H_3O^+. Un effet du même genre est mentionné par Gutowsky et Saika dans leur étude[29]) du déplacement chimique interne de H dans des solutions aqueuses d'acides, où ils n'observent qu'un seul signal de résonance.

Dans notre cas, si la durée moyenne de vie d'une liaison covalente O H entre 2 atomes donnés est très petite devant le temps de relaxation T_2 de l'interaction indirecte spin-spin H–P ($T_2 \sim 1$ seconde), le couplage indirect prendra alors une valeur moyenne:

$$\bar{J} = \frac{\int_{t_1}^{t_2} J_{\text{cov.}}\, dt + \int_{t_1}^{t_2} J_{\text{ion.}}\, dt}{t_2 - t_1} \qquad (16)$$

$$\text{avec} \quad t_2 - t_1 = T_2$$

qui correspondrait à une valeur moyenne des J s'il n'y avait pas d'échange. Cette observation d'un seul doublet n'est donc pas due à des conditions expérimentales (telle que la vitesse de passage) mais à un processus physique qui, à travers l'interaction spin-spin, ne permet pas, à un instant déterminé, de préciser si un atome d'hydrogène d'un groupement O–H appartient ou non à une liaison covalente.

Pour un acide, J variera entre $J_{\text{ion.}}$ et $J_{\text{cov.}}$ linéairement avec le degré de dissociation apparent.

De même, lors d'un mélange sel-acide, on aura en première approximation:

$$J = n_1 \cdot J_{\text{acide}} + n_2 \cdot J_{\text{sel}} \tag{17}$$

où n_1 et n_2 sont les proportions des molécules d'acide et de sel en présence.

Nos données: 1. Forme des deux courbes de la fig. 16,
2. Valeurs de J que nous avons obtenues en ajoutant HCl dans les deux acides,
3. Les valeurs données par GUTOWSKY,

permettent d'évaluer $J_{\text{max.}}$ donc le degré de dissociation apparent de $H_2PO(OH)$ et $HPO(OH)_2$ avec une assez bonne précision. Deux valeurs mentionnées dans la littérature[30]) se placent bien sur les courbes de la fig. 16: $H_2PO(OH)$ 0,5 Mol. $\alpha = 55\%$, $HPO(OH)_2$ 0,1 Mol. $\alpha_1 = 53\%$, $\alpha_2 < 1\%$.

Tableau VI

Degré de dissociation apparent des acides $H_2PO(OH)$ et $HPO(OH)_2$ en fonction de leur concentration.

Acide	Concentration Mol.	Dissociation en %	
		α_1	α_2
$H_2PO(OH)$	3,0	42	—
	6,1	28	—
	8,5	16	—
$HPO(OH)_2$	5,0	39	1
	10,0	12	—

Comme FRANK le montre[31]), on peut expliquer pourquoi la liaison covalente O–H produit une valeur de J de H–P plus élevée que la liaison ionique O–Na en utilisant un modèle similaire à celui que GUTOWSKY et MCCALL[32]) ont proposé pour expliquer les variations du déplacement chimique interne des protons liés à P de $H_2PO(OH)$ et $HPO(OH)_2$.

Normalement la différence Δ de l'électronégativité est dans le sens $H(^-)$–$P(^+)$. Cette liaison étant aussi en partie covalente et en partie ionique, on sait qu'une diminution de Δ rend la liaison moins ionique.

On sait aussi que seule la liaison covalente participe au couplage indirect et qu'un caractère plus covalent rend celui-ci plus grand (liaison totalement ionique $\rightarrow J - 0$). Si l'on admet une probabilité non nulle pour une structure $P^- - OH^+$, le Δ de $H(^-)$-$P(^+)$ diminuera et la valeur de J de H–P va donc croître.

Dans le cas du sel, la structure correspondante à $P^- = OH^+$ sera $P^- - 0$. Elle est beaucoup moins probable parce que le Δ de P et 0 est dans le sens P^+–O^-, O étant plus électronégatif que P. C'est pourquoi $J_{O\text{-}Na}$ est plus petit que $J_{O\text{-}H}$. Remarquons enfin qu'il est connu que le caractère semi-ionique de la liaison H P, lui, ne change pas en fonction de la concentration d'un acide.

Cause de la non-linéarité des courbes des figures 14 et 15

Il ne faut pas oublier que lorsqu'on mélange sels et acides, les interactions entre les différentes molécules et ions dans la solution changent en fonction des différentes proportions en présence. La dissociation apparente résultante ne sera donc pas absolument identique à $(\alpha n_1 + n_2)$, surtout si la proportion d'acide est grande puisque les lois d'Arrhenius et d'Ostwald ne sont plus valables pour de telles concentrations.

Dans le cas des fig. 14 et 15 il y a une autre raison pour laquelle les courbes n'ont pas l'aspect d'une droite que donnerait la formule (17): les concentrations des anions des différents mélanges a)-d) varient suivant les proportions de ces mélanges.

La diminution de la pente correspond à un mélange dont la concentration de l'anion (lié ou non dans l'acide et dissocié pour le sel) est plus faible.

V. Conclusion

L'étude des couplages indirects dans les champs faibles nous a permis:

a) de prouver que ce couplage indirect entre spins nucléaires est bien une interaction indépendante du champ appliqué H_0; en tout cas, lorsque celui-ci produit une précession de Larmor dont la fréquence n'est que de 100 fois plus grande que celle à laquelle correspond l'énergie de cette interaction indirecte;

b) de montrer que dans le cas de certaines molécules complexes où se produisent des couplages indirects entre plusieurs spins de noyaux de nature différente, en éliminant l'effet du déplacement chimique, on peut clarifier les spectres et obtenir des données qui permettront par la suite d'interpréter les structures compliquées enregistrées dans les champs forts;

c) enfin de voir que c'est un domaine de champ particulièrement intéressant pour mesurer avec précision la constante J correspondant à l'énergie d'interaction indirecte entre spins de noyaux différents. Ainsi,

nous avons pu déterminer le degré de dissociation apparent des deux acides $H_2PO(OH)$ et $HPO(OH)_2$ en solutions aqueuses concentrées en mettant en évidence son influence sur la valeur de J des liaisons H–P.

Ce travail a été entièrement effectué à l'Institut de Physique Expérimentale de l'Université de Genève.

Je tiens ici à remercier le Professeur R. C. Extermann de l'intérêt qu'il a manifesté à l'égard de ces recherches et le Professeur G. J. Béné qui m'a guidé dans ce travail et en a suivi toutes les phases.

Ma vive gratitude va à mes collaborateurs et amis R. Beeler, P. J. Frank, C. Manus et J. M. Rocard.

J'adresse aussi mes vifs remerciements à l'équipe de l'atelier de l'Institut de Physique (Bron, Rosset, Trovatelli et Vuille) qui a participé à la réalisation de mes appareils.

Références

1) Knight, Phys. Rev. *76*, 1259 (1949).
2) Ramsey, Phys. Rev. *77*, 567 (1950); *78*, 699 (1950); *86*, 243 (1952).
3) Proctor et Yu, Phys. Rev. *77*, 717 (1950).
4) Dickinson, Phys. Rev. *77*, 736 (1950).
5) Gutowsky, McCall et Slichter, Phys. Rev. *82*, 748 (1951); *84*, 589 (1951).
6) Hahn et Maxwell, Phys. Rev. *84*, 1246 (1951); *88*, 1070 (1952).
7) Ramsey et Purcell, Phys, Rev. *85*, 143 (1952).
8) Ramsey, Phys. Rev. *91*, 303 (1953).
9) Gutowsky, McCall et Slichter, J. Chem. Phys. *21*, 279 (1953).
10) Banerjee, Das et Saha, Proc. Roy. Soc. *A 226*, 490 (1954).
11) Anderson, Phys. Rev. *102*, 151 (1956).
12) Williams et Gutowsky, J. Chem. Phys. *25*, 1288 (1956).
13) Gutowsky, Holm, Saika et Williams, J. Am. Chem. Soc. *79*, 4596 (1957).
14) Williams, Thèse manuscrite.
15) Quinn et Brown, J. Chem. Phys. *21*, 1605 (1953).
16) Beeler, Arch. des Sci. Genève *10*, 185 (1957).
17) Arnold, Phys. Rev. *102*, 136 (1956).
18) Béné, Helv. Phys. Acta *24*, 367 (1951).
19) Grivet, Arch. des Sci., Genève, Colloque Ampère, 240 (1956).
20) Williams et Gutowsky, Phys. Rev. *104*, 278 (1956).
21) Manus, Arch. des Sci. Genève *9*, 345 (1956).
22) Rocard, Arch. des Sci. Genève *9*, 237 (1956).
23) Rocard, Arch. des Sci. Genève *10*, fasc. spéc. 209 (1957).
24) Roux et béné, J. Chem. Phys. *26*, 968 (1957).
25) Bloom et Shoolery, Phys. Rev. *97*, 1261 (1955).
26) Gutowsky, Meyer et McCall, J. Chem. Phys. *23*, 982 (1955).
27) Holm, Thèse manuscrite.
28) Baker, J. Chem. Phys. *23*, 984 (1955).
29) Gutowsky et Saika, J. Chem. Phys. *21*, 1688 (1953).
30) Kolthoff, Rec. trav. chim. *46*, 350 (1927).
31) Frank, publication à paraître.
32) Gutowsky et McCall, J. Chem. Phys. *22*, 162 (1954).

Couplages indirects des spins nucléaires dans des molécules comportantes des liaisons F-P et H-P

par **P. J. Frank**
Institut de Physique Expérimentale, Université de Genève

(29 III 1958)

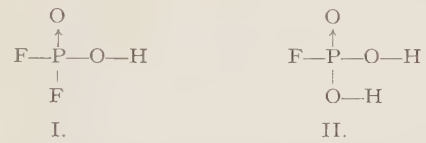
La structure fine en résonance magnétique nucléaire due au couplage indirect des spins nucléaires peut donner des indications utiles sur la structure moléculaire. Depuis le travail classique de GUTOWSKY, MCCALL et SLICHTER[1]), (GMS) sur les substances ayant des liaisons P–F et P–H, des recherches ont été axées sur les couplages spin-spin, ces spins étant séparés par un ou plusieurs noyaux de spin nul. Dans leur étude, GMS ont pu expliquer la variation du coefficient de couplage, J, en fonction de l'hybridation des orbitales électronique de l'atome de phosphor. Ainsi ils ont prévu que pour le couplage P–H, J varierait de la façon suivante: $H_2PO(OH)$ (sp^3d) > PH_3 (presque pure p^3). De la même façon, pour le coefficient de couplage F–P: $p^3 : sp^3 : d^2sp^3$ — 1 : 0,75 : 0,50. Ces prévisions ont bien vérifié les résultats expérimentaux. Les variations des coefficients de couplage dans des molécules comportant les mêmes sortes d'hybridation de liaisons n'ont pas été discutées, bien qu'on avait déjà remarqué que J diminuerait si le caractère ionique de la liaison augmentait à cause d'un mécanisme d'interaction spin-spin électronique.

Les résultats de ROUX[2])[3]), qui a étudié une série plus complète de solutions des oxy-acides et oxy-acides fluorinées de phosphor ont redonné de l'intérêt à l'étude des variations de J dans ces composés et c'est le but de ce travail d'expliquer, qualitativement, les valeurs relatives des J observés. Pour ce faire, il existe plusieurs moyens. On pourrait considérer les variations d'hybridation de liaison. D'autre part on pourrait considérer les variations des électronégativités de liaison, suivant la composition des molécules. Ou, enfin on pourrait parler des contributions apportées par des structures moléculaires différentes. Ce sont tous trois des moyens équivalents pour décrire le même phénomène. Ce dernier moyen a été choisi pour expliquer les résultats expérimentaux de R.M.N., parce que cette méthode a déjà été employée pour expliquer des phénomènes complètement différents dans ces mêmes molécules. Comme nous le verrons plus tard, les mêmes hypothèses expliquent l'ensemble de ces phénomènes, ce qui augmente considérablement la confiance qu'on peut avoir dans ces hypothèses.

On peut classer le problème de la façon suivante:

1. Pourquoi J_{FP} dans $F_2PO(OH)$ est supérieur à J_{FP} dans $PPO(OH)_2$ *a*)
   alors que J_{HP} dans $H_2PO(OH)$ est inférieur à J_{HP} dans $HPO(OH)_2$ *b*)
   et J_{HP} dans $H_2PO(ONa)$ est inférieur à J_{HP} dans $HPO(ONa)_2$ *c*)
2. Pourquoi J_{FP} dans $FPO(ONa)_2$ est inférieur à J_{FP} dans $FPO(OH)_2$ *d*)
   et J_{HP} dans $HPO(ONa)_2$ est inférieur à J_{HP} dans $HPO(OH)_2$ *e*)
   et J_{HP} dans $H_2PO(CNa)$ est inférieur à J_{HP} dans $H_2PO(OH)$? *f*)

Nous allons maintenant procéder à l'examen des questions (*a*) à (*f*) sans tenir compte des effets dus à la concentration, ceux-ci ayant déjà fait l'objet d'une publication[2]).

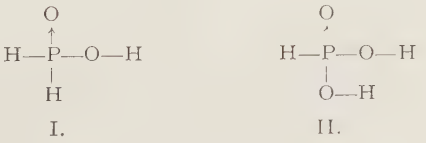


(a)

Il faut tenir compte des deux effets principaux qui s'opposent pour expliquer la différence entre les 2 valeurs de J_{FP} dans ces deux molécules.

1° L'atome de F électronégatif, attire des électrons, entraînent des structures du type $F^-—P^+$. Puisque J est nul quand il s'agit d'une structure ionique, le couplage, dans ce type de structure, est réduit. Quand il y a deux atomes F, chacun attire des électrons qui sont moins nombreux que dans les molécules où il n'y a qu'un atome F. Donc le caractère ionique des liaisons F — P est moins important dans le cas I que dans le cas II et par conséquent J_{FP} (I) > J_{FP} (II). MEYER et GUTOWSKY[4]) ont présenté un raisonnement semblable pour expliquer les déplacements chimiques dans les méthanes substitués.

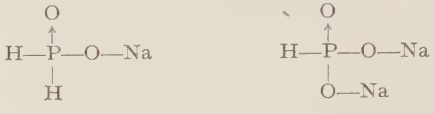
2° Il y a un effet contraire dû aux structures de la forme $F—P^- = OH^+$. La charge négative sur l'atome P diminue le caractère ionique de la liaison F—P, et augmente ainsi le J. Puisque la probabilité d'existence de cette structure augmente avec le nombre de groupes OH, on devrait s'attendre à J_{FP} (I) < J_{FP} (II). En plus il est possible qu'il existe des effets dus aux doubles-liaisons dont on pourra tirer les conclusions décrites dans 1° ci-dessus. Les résultats expérimentaux prouvent que les effets décrits en 2° sont moins importants que ceux dus à la combinaison des deux autres.



(b)

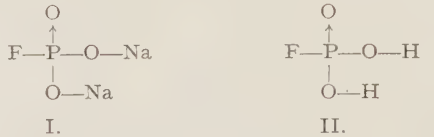
L'électronégativité de l'atome H n'est que très légèrement supérieure à celle de l'atome de P. Ainsi le processus décrit dans (*a*.1) ne sera pas important et (*a*. 2) deviendra l'effet dominant. Il n'y a pas d'effets dus aux liaisons-doubles, parce que l'hydrogène ne peut pas avoir plus d'une liaison. Ainsi $J_{HP}(I) < J_{HP}(II)$ à cause de la contribution de $P^- - OH^+$.

Ce modèle a été utilisé par Gutowsky et McCall[5]) pour expliquer les déplacements chimiques relatifs dans ces molécules.



(c)

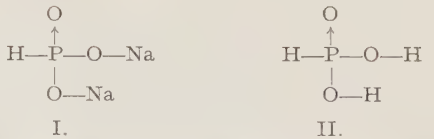
Le raisonnement précédent (*b*) peut être appliqué à ces molécules. $J_{HP}(I) < J_{HP}(II)$.



(d)

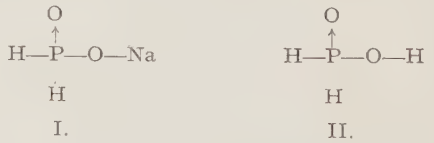
Le sel (I) est plus ou moins complètement ionisé, tandis que l'acide (II) n'est que partiellement ionisé.

La probabilité d'existence des structures du type $F^-—P^+$, dont il a été question en (*a*.1), est probablement aussi grande dans les deux sortes d'échantillons (I et II). Ainsi, dans ces échantillons (*d*.I et *d*.II) et dans les suivants (*e* et *f*), les effets (*a*.2) seront les plus importants. Le couplage spin-spin plus grand dans II est attribué au fait que les structures $P^- = OH^+$ dans II sont relativement plus probables que cette structure $P^- = O$ dans I. Donc $J_{FP}(I) < J_{FP}(II)$.



(e)

Ici on applique le même raisonnement que précédemment (*d*), pour montrer que $J_{HP}(I) < J_{HP}(II)$.



(f)

Comme on doit s'y attendre, on tire les mêmes conclusions que dans *d* et *e*. Donc $J_{HP}(I) < J_{HP}(II)$. On constatera l'intérêt du fait que dans *e*

le $\Delta J/J$ est plus grand que dans *f*. C'est parce que la probabilité d'existence de $P^- = OH^+$ est beaucoup plus grande dans (*e*. II) que dans (*f*. II).

Je tiens à remercier M. le Professeur R. C. Extermann qui m'a permis de poursuivre ces recherches dans son laboratoire, et M. le Professeur G.-J. Béné pour l'intérêt qu'il a manifesté à l'égard de ces recherches. Ma gratitude va également à mes collaborateurs et amis, les Drs J.-M. Rocard et D. Roux. Je tiens aussi à remercier Mademoiselle J. C. Shaw qui a bien voulu s'occuper de la réalisation du manuscrit.

Références

[1]) H. S. Gutowsky, D.W.McCall et C. P.Slichter, J.Chem. Phys. *21*, 279 (1953).
[2]) D. Roux, Archives des Sciences *10*, Colloque A.M.P.E.R.E., 217 (1957).
[3]) D. Roux, Thèse, Helv. Phys. Acta (article précédent).
[4]) L.H. Meyer et H. S. Gutowsky, J. Phys.Chem. *57*, 481 (1953).
[5]) H. S. Gutowsky et D.W.McCall, J.Chem. Phys. *22*, 162 (1954).

Lacunomètre: appareil de mesure semi-automatique des longueurs moyennes et du spectre des longueurs de lacunes, dans les émulsions nucléaires

R. Weill, C. Joseph, M. Gailloud et **Ph. Rosselet**
(Laboratoire de Recherches Nucléaires, E.P.U.L., Lausanne)

(24. III. 1958)

Abstract. The stage of Koristka microscope M.S. 2 is driven by a phonograph motor. A cam moved by this motor produces electric pulses through a set of contacts. The pulses are transmitted by a morse key to a system which gives the mean value and the differential spectrum of gap lengths. The use of switching circuits and selectors enables us to build an apparatus much more simple and stable than those based on electronic devices. If the stage speed is kept at 0,4 μm/sec, the error on mean gap length is 1 to 2% for «plateau» track, and 3 to 4% for a four time greater blobs density.

La longueur moyenne des lacunes G présente une grande importance pour l'étude des événements produits dans les émulsions nucléaires et des techniques de développement[1)2)] car elle ne dépend dans de larges limites que de la température du développement[3)]. Sa détermination soit à partir de la longueur totale, soit à partir du spectre des longueurs de lacunes, est une opération longue et fastidieuse lorsqu'elle est effectuée par mesures micrométriques. Divers auteurs[4)5)6)] ont imaginé des dispositifs de mesures semi-automatiques basés sur des circuits électroniques. Les difficultés rencontrées dans la mise au point d'un tel dispositif nous ont conduits à la réalisation d'un appareil utilisant uniquement des relais et sélecteurs électromécaniques dont la stabilité est bien supérieure à celle qu'on peut attendre des circuits électroniques.

Fonctionnement du lacunomètre

Le déplacement de la platine du microscope est commandé par un moteur; une came actionnée par ce même moteur produit des impulsions électriques par l'intermédiaire d'un jeu de contacts. Un manipulateur permet de transmettre au lacunomètre les impulsions produites pendant le passage de chaque lacune sous le fil du réticule oculaire.

Un élément binaire G («gate») constitué de 3 relais enclanche et déclanche alternativement les contacts b_3 à b_6 à chaque fermeture du mani-

pulateur (fig. 1), c'est-à-dire au début et à la fin d'une lacune. Les impulsions de la came parviennent à la bobine du relais L dont les contacts l_1 et l_2 se ferment à chaque impulsion.

A la fin de la première impulsion de came le relais K est mis sous tension par l'intermédiaire du «retard» R; les contacts k_1 et k_2 se ferment; K reste alimenté et la décade D est mise sous tension. Elle est mise à la terre par l_2 à chaque impulsion suivante. Les impulsions de la décade, d'une durée d'environ 50 ms, sont transmises par le «correcteur d'impulsions» C au «circuit d'occupation et de déconnexion» 0. Le numérateur N_i totalise les impulsions produites pendant que 1_2 est fermé, et donne une mesure de la longueur de la lacune. Le numérateur N_n enregistre le nombre des lacunes.

Le sélecteur à moteur M et S comporte un bras tournant pas à pas lorsque le moteur est commandé par les impulsions de la décade (contact 1_3 fermé, contacts 1_5 et 2_2 ouverts). A la fin de la lacune, le «gate» revient à l'état initial; le relais I n'étant plus alimenté, 1_5 se ferme, 1_4 s'ouvre et le relais II se déclanche avec un retard de 50 ms. Le bras du sélecteur est mis sous tension pendant cette durée, et le numérateur connecté à la position sur laquelle il s'est arrêté (ième position) avance d'une unité indiquant que l'on vient de compter une lacune de longueur comprise entre i et $i + 1$ impulsions. Au bout des 50 ms, 2_1 coupe l'alimentation sur le bras et 2_2 se ferme, mettant le relais V en service car C_1 est fermé lorsque le bras n'est pas sur la position 0. Le circuit de retour à zéro est alors fermé par 5_1; le moteur est sous tension constante et le bras tourne de façon continue (1 tour/sec) entraînant la came C. A la position zéro, la came coupe l'alimentation de V et le moteur s'arrête.

Ce dispositif permet d'enregistrer le spectre différentiel des longueurs de lacunes. Grâce à la démultiplication par 10 des impulsions de came, le chevauchement des classes est réduit à un dixième de leur longueur.

Déplacement de la platine

Nous avons utilisé un moteur de tourne-disques Thorens E 53 N à 3 vitesses ($33\frac{1}{3}$, 45, 75 tours/min), muni d'un réglage fin continu permettant de varier chacune d'elles d'environ 30%. Il ne produit pratiquement aucune vibration, ce qui permet de le placer sur la même table que le microscope. Il est couplé à l'aide de 2 trains d'engrenages de précision Thorens (rapport de réduction 26) à l'axe d'entraînement du microscope Koristka M. S. 2. Les vitesses de déplacement de la platine sont de 0,41, 0,56 et 0,90 μm/sec. La came, montée sur l'axe du moteur, produit 10 impulsions par tour; le déplacement de la platine entre deux impulsions de la décade est de 0,74 μm.

*

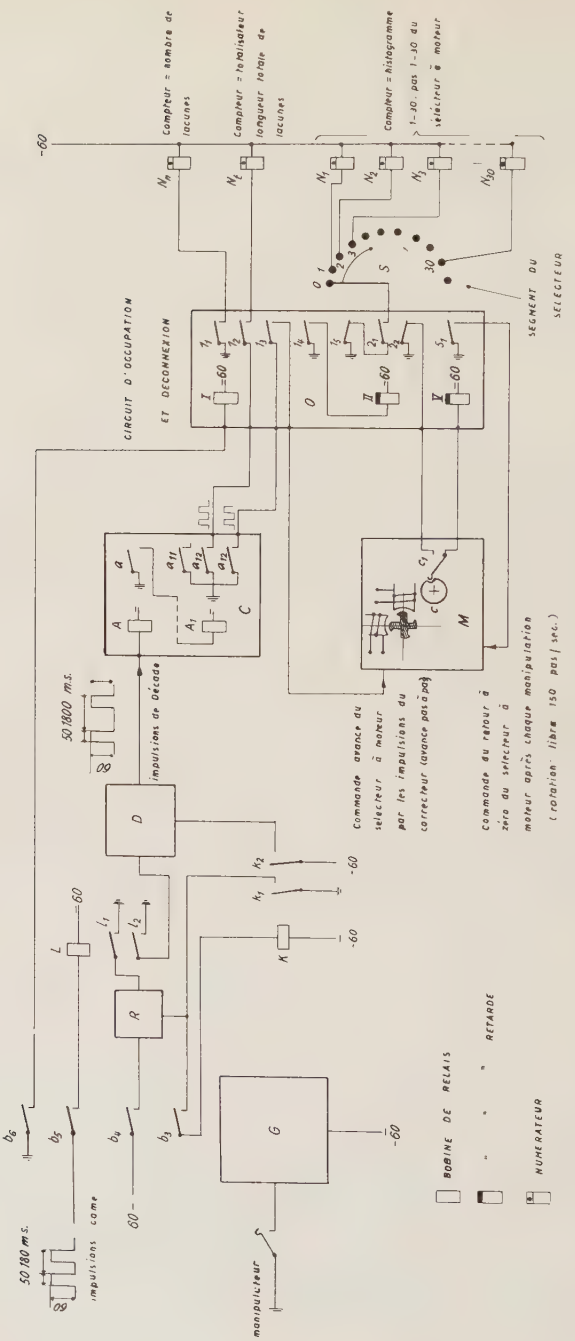


Fig. 1. Schéma bloc du Lacunomètre

Le temps mort du dispositif, déterminé par la durée de remise à zéro du sélecteur, est maximum pour les lacunes de la première classe (0,4 sec). L'avance correspondante de la platine (0,36 μm à la plus grande vitesse) est inférieure à la longueur minimum d'un blob.

La fig. 2 donne une vue d'ensemble du lacunomètre.

Contrôle du lacunomètre

Nous avons comparé les longueurs moyennes et les spectres de longueurs de lacunes mesurés au micromètre et au lacunomètre (vitesse 0,4 μm/sec) sur un tronçon de 1,5 mm de trace d'électron au plateau et de 1,5 mm de trace de particule α relativiste. Les résultats reportés à la fig. 3 montrent que pour des traces au plateau la dispersion des résultats obtenus par divers expérimentateurs est la même (de 1 à 2%) pour les mesures effectuées au micromètre et celles faites au lacunomètre; elle est inférieure à l'erreur statistique qui est d'environ 5%. Pour les traces à



Fig. 2. Vue d'ensemble microscope Koristka M.S. 2 et Lacunomètre

4 fois le plateau l'écart entre les mesures effectuées au lacunomètre et celles au micromètre dépasse légèrement l'erreur statistique (environ 5%). Remarquons que dans ce cas la largeur d'une classe est voisine de la valeur de G. Nous avons constaté que la dispersion des mesures est doublée lorsque la vitesse de la platine est de 0,6 μm/sec.

Nous remercions M. le professeur Haenny pour ses suggestions. Mr. Otti, chef d'exploitation aux P.T.T. à Lausanne, et ses collaborateurs ont pris une part importante à la réalisation de cet appareil. Nous leur exprimons toute notre gratitude.

Nous avons également bénéficié de l'expérience de Mr. J. Rüfenacht et de l'aide de Melle Ippolito qui a collaboré aux mesures de contrôle.

Ce travail a été réalisé grâce à l'appui matériel du Fonds National Suisse de la Recherche Scientifique.

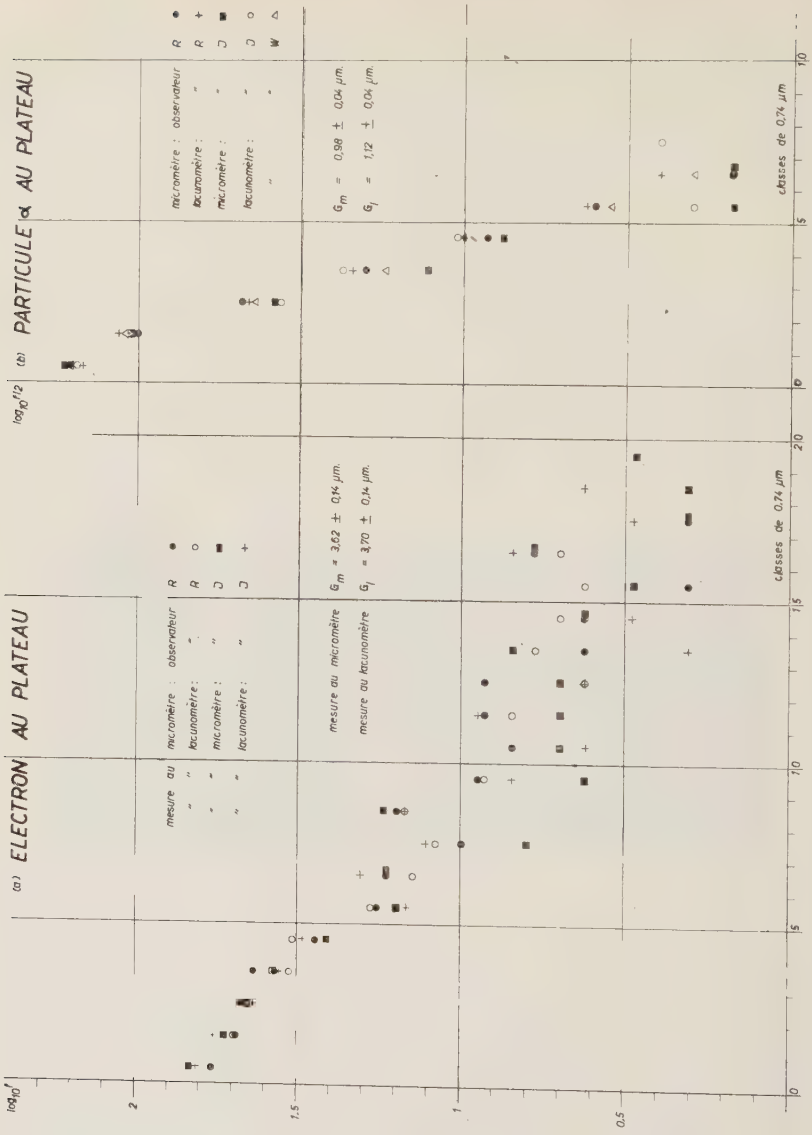


Fig. 3. Spectre de distribution des longueurs de lacunes (l = fréquences)

Bibliographie

1) C. O'CEALLAIGH, Supl. Il Nuovo Cimento *12*, 412 (1954).
2) M. DELLACORTE, M. RAMAT, L. RONCHI, Jr., Il Nuovo Cimento *10*, 509 (1953).
3) G. FATZER, R. WEILL, M. GAILLOUD, C. HAENNY, C. R. colloque international de photographie corpusculaire. Strasbourg 1957; G. FATZER, Thèse, à paraître.
4) H. M. MAYER, Circulation du C.E.R.N. Standardisation des mesures dans les émulsions BS 20, 10. 5. 1955.
5) G. BARONI, C. GASTAGNOLI, Il Nuovo Cimento *12*, 364 (1954).
6) K. ENSLEIN, Rev. Sc. Inst. *28*, 144 (1957).

© 1958 by Schweizerische Physikalische Gesellschaft
Société Suisse de Physique. – Società Fisica Svizzera
Nachdruck verboten – Tous droits réservés – Printed in Switzerland

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft

in Glarus, am 13. und 14. September 1958
im Rahmen der 138. Jahresversammlung
der Schweizerischen Naturforschenden Gesellschaft

Präsident: Prof. Dr. J. Rossel (Neuchâtel)
Sekretär: Dr. K. P. Meyer (Basel)

Geschäftlicher Teil

Als ordentliche Mitglieder wurden aufgenommen: Die Herren René M. Berthier (Grenoble), Peter Diehl (Basel), Robert G. Morris (Rapid City), M. Schneeberger (Bern), K. E. Drangeid (Zürich).

Die nächste Tagung wird am 2./3. Mai 1959 in Brugg stattfinden.

Wissenschaftlicher Teil

Drei Beiträge aus dem Gebiete der angewandten Physik erscheinen in der «Zeitschrift für angewandte Mathematik und Physik (ZAMP)».

Un nouveau monochromateur dans les domaines de Schumann et Lyman

par E. Lüscher (Laboratoire optique Metrohm S. A., Lausanne et Herisau)

Introduction

La spectrométrie d'absorption dans l'ultraviolet lointain, longueurs d'ondes inférieures à 2000 Å, n'a fait l'objet, jusqu'à ces dernières années du moins, que d'un nombre restreint de travaux, ceci en raison des difficultés expérimentales. Les spectres d'absorption dans cette région sont susceptibles de fournir d'utiles réponses sur les structures moléculaires. Nous nous proposons de décrire la construction d'un monochromateur à réseau concave, en incidence normale, dans le domaine de 2000 Å à 500 Å.

Montage optique

Le montage optique du monochromateur est celui de Fujioka et Ito[1]) et de Tonsey et Johnson[2]). Le réseau concave, d'un mètre de rayon de

courbure et de 576 traits par mm, est monté sur un bras tournant dont le centre de rotation est au centre du cercle de ROWLAND (voir fig. 1):

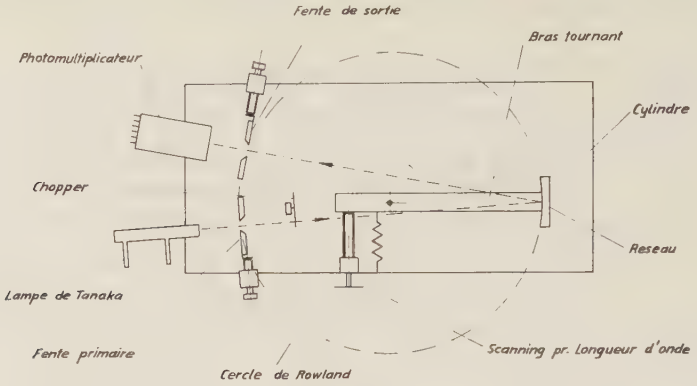


Fig. 1

Ce bras est entraîné par un moteur synchrone monté à l'extérieur du spectromètre. La fente d'entrée et de sortie sont réglables de façon continue et indépendante entre 0,01 et 2 mm. Le défilé de longueur d'onde est possible dans un intervalle de 1300 Å. Pour varier le domaine de travail, le réseau lui-même peut être tourné autour d'un axe vertical au moyen d'une vis micrométrique. La figure 2 montre une vue de l'intérieur de la tête du monochromateur:

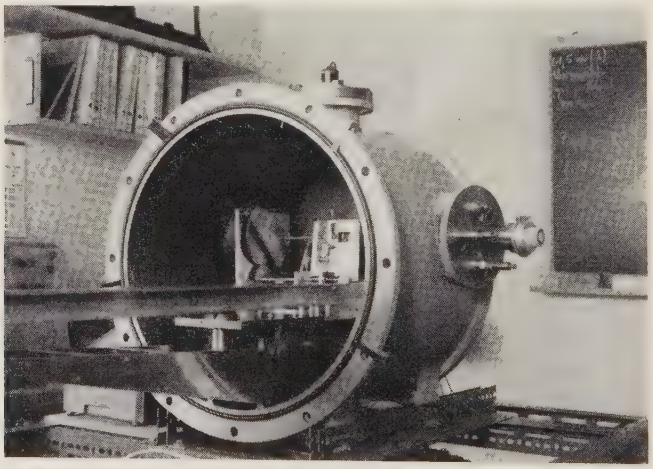


Fig. 2

où l'on reconnaît le mécanisme de scanning pour les longueurs d'ondes. Un vide de 10^{-5} Torr peut être maintenu à l'intérieur du spectromètre avec une pompe à diffusion Pfeiffer.

Source lumineuse

La spectrographie d'absorption nécessite, en principe, une source produisant un spectre continu d'intensité suffisante dans la région étudiée et dont la stabilité permette des mesures photoélectriques. Pour nos travaux, nous utilisons des lampes à hydrogène et des lampes à décharge dans un gaz rare selon TANAKA[3]). La répartition spectrale d'une lampe à hydrogène avec enveloppe de quartz est représentée dans le diagramme suivant (fig. 3):

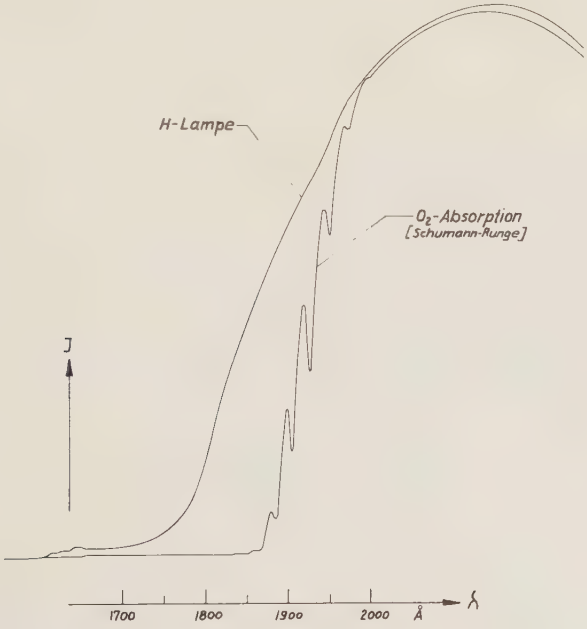
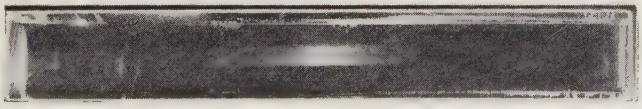


Fig. 3

La lampe elle-même a été séparée du monochromateur par une fenêtre en LiF et une atmosphère d'Argon pur entourant cette lampe. La lampe de Tanaka est remplie d'un gaz rare, très pur, à 100 mmHg. La décharge (12000 V à vide) est faiblement condensée par 500 pf. La figure 4 montre le spectre continu du Xenon.



1930 1658

Fig. 4

Comme repère, nous utilisons les raies du carbone 1930 Å et 1658 Å. Il est probable que les états suivants se forment dans la décharge:

$$^3P_0 \qquad ^3P_1 \qquad ^3P_2$$

Les collisions de ces atomes avec les atomes à-l'état de base $^1S_0$ sont responsables pour des états moléculaires:

$$^3\Pi_u \quad ^3\Pi_g \quad ^3\Sigma_u^+ \quad ^3\Sigma_g^+$$

Selon TANAKA, le spectre continu de XENON est formé par les transitions suivantes:

$$^3\Sigma_u^+ \rightarrow {}^1\Sigma_g^+$$

$$^1\Sigma_u^+ \rightarrow {}^1\Sigma_g^+$$

$$^3\Pi_u \rightarrow {}^1\Sigma_g^+$$

$$^1\Pi_u \rightarrow {}^1\Sigma_g^+$$

Tous ces états ont la même configuration d'électron, ce qui a probablement pour résultat de faire passer un électron de l'orbite $\sigma_u\, 5_P$ à l'orbite $\sigma_g\, 6_S$.

Les transitions susmentionnées ne suivent pas les règles de sélection, qui ne sont guère applicables à cause du fort couplage spin-orbite. Pour obtenir des spectres continus dans d'autres régions, l'on utilise d'autres gaz rares:

Krypton [4]) 1250 à 1650 Å
Neon [5]) 744 à 792 Å

Récepteur photoélectrique

Pour la détection des intensités lumineuses, nous utilisons jusqu'à 1550 A un multiplicateur photoélectrique muni d'une fenêtre en Al_2O_3. Jusqu'à la limite de transparence du LiF à 1200 Å environ, nous employons un photomultiplicateur EMI Type 6094 A avec un écran de $CaWO_4$ ou de salicylate de sodium déposé sur une fenêtre en LiF.

Dans le domaine de Lyman, nous étudions actuellement un système de photomultiplicateur, monté directement dans le vide, analogue aux montages tels qu'ils sont utilisés dans les spectrographes à masse.

La lumière de la source est hâchée à une fréquence de 11 Hz, ce qui permet une amplification à courant alternatif [6]). Un potentiomètre enregistreur est branché à la sortie de l'amplificateur.

L'auteur se fait un agréable devoir de remercier la Maison Metrohm d'avoir mis à sa disposition les moyens permettant d'entreprendre ce développement. Ses remerciements vont également au Professeur Miescher et au Dr TANAKA pour leurs conseils judicieux concernant la source.

References

[1]) Y. Fujioka et R. Ito, Sci. of Light (Japan) 1. 1 (1951).
[2]) R. Tonsey et F. S. Johnson, J. Opt. Soc. Am. 41. 696 (1951).
[3]) Y. Tanaka, J. Opt. Soc. Am. 45. 710 (1955).
[4]) P. G. Wilkinson, J. Opt. Soc. Am. 45. 1044 (1955).
[5]) Y. Tanaka, A. S. Jursa et F. J. le Blanc, J. Opt. Soc. Am. 47. 105 (1957).
[6]) R. Dessoulavy, J. Durand et E. Lüscher, ZAMP, sous presse.

Erfahrungen mit dem Gitter-Spektrometer von Leeds & Northrup bei Absorptionsmessungen an Gasen

von K. Wieland
(Physikalisches Institut der Universität Basel)

Seit wenigen Jahren stellt die Firma Leeds & Northrup (Philadelphia) und, neuerdings, auch die Jarrell-Ash Comp. (Massach.) ein über den Wellenlängenbereich 8000–2000 A *registrierendes Gitter-Spektralphotometer* her, das in erster Linie für die quantitative *Emissionsspektralanalyse von Flammen* gedacht ist. Als Ausnahmefall hat der Vortragende das Spektrometer von Leeds & Northrup, das aus Mitteln des Schweizerischen Nationalfonds angeschafft werden konnte, vor allem für quantitative *Absorptionsmessungen von Gasen und Dämpfen* benützt. Über die dabei gemachten Erfahrungen soll hier kurz berichtet werden.

Eine Beschreibung dieses Spektrometers und seiner Eignung für die Untersuchung von Emissionsspektren geben Broida & Shuler (J. Chem. Phys. *20*, 168 (1952)). Unter Verwendung einer *Gitterreplica von* Bausch & Lomb mit 1220 Strichen pro mm beträgt die lineare Dispersion am Austrittsspalt 11 A/mm in 1. bzw. 5,5 A/mm in 2. Gitterordnung. Scharfe Linien mit einem Wellenlängenunterschied von 0,3 A können in 2. Ordnung noch völlig getrennt und bei Einschalten der langsamsten Gitterrotation in einem Abstand von 1,5 cm registriert werden. Unter Ausnützung eines starken Intensitätsmaximums («blaze») des Gitters bei 5600 A *in 1. Ordnung* wird der sichtbare Spektralbereich (nominell 8100–3700 A) nur in dieser Ordnung registriert. Mit einer Wolframbandlampe als Lichtquelle und einem Glasfilter zur Fernhaltung des ultravioletten Lichtes lassen sich *Absorptionsmessungen von etwa 7000–3700 A* ohne nennenswerte Schwierigkeiten quantitativ ausführen. Allerdings zwingt die sehr ungleiche Intensitätsverteilung mit starkem Maximum bei 5165 A den genannten Bereich in mindestens 6 Stufen von verschiedener Verstärkung zu unterteilen.

Für *Absorptionsmessungen im ultravioletten Gebiet* ist die *2. Ordnung* (nominell 4050–1850 A) vorgesehen, wobei durch Vorschalten eines Schwarzfilters (z. B. *Filter UG5* von Schott) das Licht 1. und 3. Ord-

nung ferngehalten werden muss. Das bedeutet eine *Begrenzung kurzwelligerseits auf etwa 2400 A*. Mit einer Wasserstofflampe als Lichtquelle erhält man dann eine ziemlich gleichmässige Intensitätsverteilung von 3700 2700 A. Erst das stark abfallende kurzwellige Ende von 2700 bis 2400 A erfordert eine merklich grössere Verstärkung des Photostromes.

Durch Verstellen der geeichten Gitterposition kann jedoch *das ultraviolette Gebiet auch in 1. Gitterordnung* registriert werden, wobei *kein Filter* benötigt wird. Mit der Wasserstofflampe erhält man jetzt ein starkes Intensitätsmaximum bei 2430 A, so dass sowohl der kurzwellige ($\lambda \gtrsim 2200$ A) als auch der langwellige Teil ($\lambda \lesssim 2700$ A) bei stufenweise steigender Verstärkung des Photostromes registriert werden kann. *Bei maximaler Verstärkung* kommt man sogar *bis gegen 1900 A*, also bis ins Gebiet der vom Luftsauerstoff herrührenden Absorptionsbanden.

Zusammenfassend stellen wir fest, dass mit dem registrierenden Spektrometer von L. & N. ohne grosse Umstellungen in 1. Ordnung *quantitative Absorptionsmessungen in jedem Spektralgebiet zwischen 7000 und 1950 A* ausgeführt werden können, *in 2. Ordnung auch zwischen 3700 und 2400 A*. So haben wir, z. T. mit grosser Auflösung, die die Rotationsstruktur der einzelnen Banden erkennen lässt, die Absorptionsbanden von Gasen und Dämpfen wie J_2 (6000–5000 A), S_2 (3000–2500 A), CS_2 (3400–3000 A), PbCl (2900–2600 A), O_2 (2000–1900 A) in Abhängigkeit von Druck und Temperatur registrieren können.

Zweispiegel-Anastigmat mit konzentrischen Kugelflächen

von P. Erdös
International Business Machines Corporation
(Forschungslaboratorium Zürich)

Die Abbildung einer in endlicher Entfernung liegenden polychromatischen Lichtquelle erfordert die Verwendung reflektiver Optik, damit die Farbfehler – insbesondere im Ultravioletten – behoben werden. Mit einem krummen Spiegel lässt sich keine fehlerfreie Abbildung herstellen. Jurek[2]) bewies, dass sich dies durch zwei Spiegel nur mit Hilfe asphärischer Flächen erreichen lässt. Für ein unendlich entferntes Objekt wurden die Flächenformen von Schwarzschild[1]), für ein endliches Objekt von Head[3]) bestimmt.

Für endlichen Objekt- und Bildabstand wurde ein Zweispiegelsystem konstruiert, das frei von sphärischer Aberration 3. Ordnung ist (siehe Fig. 1). Es lässt sich zeigen, dass die Konzentrizität das gleichzeitige Verschwinden des Koma mit sich bringt. Ferner wird bewiesen, dass falls zwei der drei Aberrationen 3. Ordnung eines konzentrischen Zwei-

spiegelsystems: sphärische Aberration, Koma und Astigmatismus verschwinden, so verschwindet auch die dritte. Das System ist somit ein

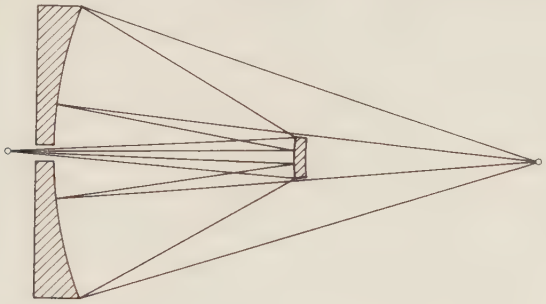


Fig. 1

Anastigmat. Die Bedingung, die das Spiegelradienverhältnis g und den reduzierten Objektabstand x verknüpft, ist:

$$g = -\frac{1}{2} + \frac{1}{x} - \sqrt{\frac{1}{x} - \frac{3}{4}} \qquad x = \frac{w}{2\,w+g}$$

(vgl. Fig. 2). Ein reelles Bild entsteht für $1/2\,x < g < 1/x$.

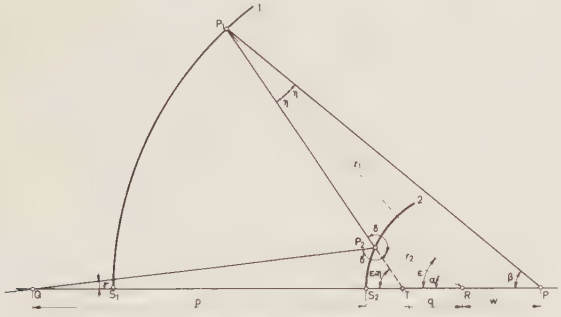


Fig. 2

Der Radius des Zerstreuungskreises der sphärischen Aberration 5. Ordnung in der Gauss'schen Bildebene ergibt sich zu

$$b = \frac{3\,(g-1)\,x^2}{(1-x)\,(2\,gx-1)}\left[\frac{3}{4} - \frac{gx}{(1-x)^2}\right]\varepsilon^5\,r_2$$

Der maximale Durchmesser des komatischen Flecks in derselben Ebene wird:

$$c = 15\,\frac{(1-2\,x)\,(g-1)\,x}{g(2\,g\,x-1)^2} - \left[\frac{3}{4} - \frac{gx}{(1-x)^2}\right]\varepsilon^4\,y$$

y = Objektabstand von der Achse

Beschränkt man sich auf Bilder ausserhalb des Spiegelzwischenraumes, so sind die Bildfehler minimal für $g = 4$, $x = 1/7$.

Vergrösserung, zentrale Abdeckung, Toleranzen für Justierung usw. wurden berechnet. Eine ausführlichere Arbeit erscheint später in den Proc. Phys. Soc. oder J. Am. Optical Soc.

Literatur

[1]) K. Schwarzschild, Astr. Mitt. Sternwarte Göttingen *9*, 3 (1905); *ibid. 10*, 3 (1905).
[2]) B. Jurek, Rozpravy Československé Akademie Věd. *65*, 1 (1955).
[3]) A. K. Head, Proc. Phys. Soc. *70*, 945 (1957).

Energétique générale du courant de Hall

par Albert L. Perrier (Lausanne)

I. Dès 1927, l'auteur a publié une série de notes où sont exposées sommairement un ensemble de propositions concernant les phénomènes magnétogalvaniques et magnétothermoélectriques[1]). Voici quelques aspects caractéristiques de cet ensemble en ce qui touche les *effets longitudinaux et transversaux en l'absence de gradients thermiques*; cette introduction est nécessaire à l'intelligence de la suite.

1. Considération systématique non seulement d'effets Hall «force électromotrice», mais aussi d'effets «courants». Multiplicité de définitions possibles de la résistance, notamment à court circuit transversal (ϱ_f) et dans les conditions traditionnelles (ϱ_0); établissement de leur liaison

$$\varrho_f = \varrho_0/\cos^2\varrho = \varrho_0(1+\mathrm{tg}^2\,\varphi)\,. \tag{1}$$

2. Etude comparée de trois repésentations de l'effet Hall, savoir: le mode traditionnel mais à l'aide d'une «résistivité transversale» ($\varrho_\perp$ ou $\varrho_h \approx RB$ dans les cas d'effets faibles); puis par une «conductivité transversale» ($\gamma_\perp \approx \varrho_\perp/\varrho^2$, pour effets faibles), enfin par la rotation spécifique ($\mathrm{tg}\,\varphi/B$). En bref, on considère comme fonctions représentatives ou des champs électriques ($\vec{E}$) ou des densités de courant ($\vec{J}$), ou des angles.

3. Une conséquence essentielle de ces recherches est que *les lois de l'effet Hall d'une part, celles de la magnétorésistance de l'autre ne sauraient être clairement interprétées sans la connaissance simultanée des unes et des autres*[2]). D'ailleurs, $\vec{B}$ (ou $\vec{H}$) et la température étant fixées, la mesure de deux quelconques des grandeurs ϱ_0, ϱ_f et φ implique la connaissance de la troisième, ce qui signifie entre autres que *l'effet Hall* (*phénomène «transversal» ou rotationnel*») *peut être déterminé par deux mesures «longitudinales»* (ϱ_0 et ϱ_f): voie à vrai dire peu précise avec des effets faibles (dépendance quadratique de φ!)

4. On peut avoir à considérer des liaisons entre de multiples grandeurs magnétogalvaniques. Nous avons indiqué pour cela une voie très simple: l'emploi d'une construction géométrique, le polygone magnétogalvanique caractéristique*). Cette construction *est valable quelle que soit l'intensité des phénomènes*; elle est précieuse précisément dans le cas de grandes intensités où, comme on sait, les lois se compliquent. Ces travaux seront repris avec détails dans une publication d'ensemble qui englobera la généralisation résumée ci-dessous.

II. Paramètres pour les courants magnétogalvaniques transversaux. On sait que les effets magnétogalvaniques ont donné lieu en ces dernières

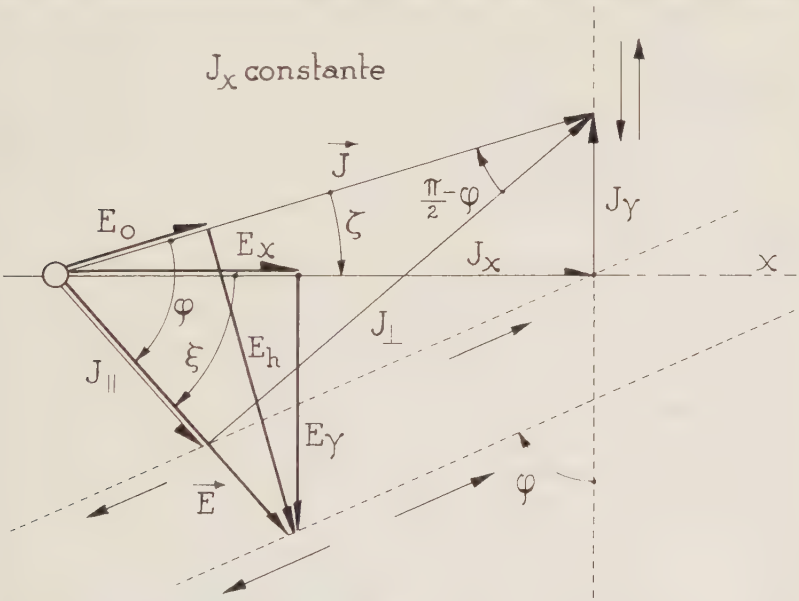


Fig. 1

années à de nombreuses applications dans la technique des courants faibles («générateurs» ou «transformateurs», courants tant continus qu'alternatifs). Leur possibilité est redevable essentiellement à la réalisation de semi-conducteurs dont les réactions magnétogalvaniques intenses ont permis en particulier *l'emploi extensif de courants entretenus par les forces électromotrices de Hall.*

Toutefois cet avantage implique pas mal de complications expérimentales que l'on surmonte plus ou moins empiriquement; pensons seulement aux «*facteurs de forme*». Un objet principal de la présente note est

*) Invoqué à plusieurs reprises dans des publications antérieures et projeté en séances de la Société suisse de physique, ainsi qu'au Colloque à la mémoire de P. Weiss à Strasbourg (été 1956), mais non encore imprimé jusqu'ici (voir figure).

de *montrer comment la méthode du polygone est susceptible d'application générale à de telles questions. Elle donne un moyen de les traiter rationnellement.*

Le problème est principalement d'établir *des relations quantitatives entre les variables «longitudinales», soit relatives au courant d'alimentation («primaire», «Streustrom») et celles afférentes au circuit transversal.*

La généralisation, considérable, réside justement en ceci que *nous pourrons donner à l'intensité transversale toutes les valeurs possibles.*

Soit une lame rectangulaire dans un champ d'induction magnétique normal à son plan (dir. *oz*). Comme de coutume, nous choisissons des axes de référence dans les directions des paires d'arêtes: *ox* = longitudinal; *oy*, secondaire, transversal; et nous localisons les phénomènes en un point, les rapportons à l'unité de volume et les supposons répartis uniformément dans toute la lame*).

Principe. – Quelle que soit l'*étape atteinte par les phénomènes, l'état magnétogalvanique en un point du conducteur est déterminé par deux vecteurs, la densité de courant* $\vec{J}$ *et le champ électrique* $\vec{E}$ *résultants, formant entre eux l'angle* φ.

L'induction $\vec{B}$ et la température étant données, les paramètres φ, ϱ_0, ϱ_f sont fixés, le polygone caractéristique demeure alors en toutes circonstances semblable à lui-même (fig.); l'*évolution est décrite simplement et exactement par la variation de ses dimensions et de son orientation***). Nous choisissons enfin et de propos délibéré comme variable indépendante pour décrire cette évolution l'angle ζ formé par $\vec{J}$ avec l'axe des x. Pour le surplus, nous renvoyons à la figure. Quelques relations fondamentales que voici y sont d'emblée évidentes:

$$\vec{J} = J_{//} / \cos\varphi = \vec{E} / \varrho_f \cos\varphi \tag{2}$$

$$E_x = \vec{E}\cos(\varphi - \zeta) \qquad E_y = \vec{E}\sin(\varphi - \zeta) \tag{3}$$

$$J_x = \vec{J}\cos\varphi \qquad J_y = \vec{J}\sin\varphi. \tag{4}$$

A leur aide ainsi que de l'équation (1) on établit les égalités:

$$J_x = \frac{E_x \cos\zeta}{\varrho_f \cos(\varphi - \zeta)\cos\varphi} = \frac{E_x(1+\mathrm{tg}^2\varphi)}{\varrho_f(1+\mathrm{tg}\,\varphi\,\mathrm{tg}\,\zeta)} \tag{5}$$

$$J_y = -\frac{|E_y|\sin\zeta}{\varrho_f \sin(\varphi - \zeta)\cos\varphi} = -\frac{E_y(1+\mathrm{tg}^2\varphi)\,\mathrm{tg}\,\zeta}{\varrho_f(\mathrm{tg}\,\varphi - \mathrm{tg}\,\zeta)}. \tag{6}$$

*) Cela peut occasionner des difficultés expérimentales; l'auteur a indiqué autre part des moyens propres à réaliser cette uniformité. (Division des circuits extérieurs en tronçons parallèles, au besoin en usant de régimes non permanents[3]).)

**) Sur la figure, φ est considérablement exagéré vi-à-vis des valeurs usuelles de l'expérience, ce pour la clarté de l'exposé. Cela souligne au surplus la généralité de l'emploi de ce diagramme, singulièrement si les effets sont intenses.

Pour nous conformer à un usage des techniciens, nous convenons d'appeler «résistivité» tout rapport E/J, bien qu'il ne soit plus généralement constant et que la formule de Joule (ϱJ^2) ne symbolise plus en général une quantité exclusive de chaleur, il s'ensuit alors les expressions*)

$$\varrho_x = \frac{E_x}{J_x} = \varrho_f \frac{\cos(\varphi-\zeta)\cos\varphi}{\cos\zeta} = \varrho_f \frac{1+\operatorname{tg}\varphi\operatorname{tg}\zeta}{1+\operatorname{tg}^2\varphi} \tag{7}$$

$$\varrho_y = \frac{|E_y|}{J_y} = -\varrho_f \frac{\sin(\varphi-\zeta)\cos\varphi}{\sin\zeta} = \varrho_f \frac{\operatorname{tg}\varphi-\operatorname{tg}\zeta}{(1+\operatorname{tg}^2\varphi)\operatorname{tg}\zeta}. \tag{8}$$

III. Energies transversales et longitudinales. En possession de ces formules, on peut écrire immédiatement les expressions des énergies afférentes aux composantes de courant suivant *ox* et *oy*, c'est-à-dire les échanges d'énergie de la lame avec ces circuits extérieurs respectifs; les symboles W désignent en fait *des puissances par unité de volume.*

$$W_x = E_x J_x = \varrho_x J_x^2 = \varrho_f J_x^2 \frac{\cos(\varphi-\zeta)\cos\varphi}{\cos\zeta}$$

$$= \varrho_f J_x^2 \frac{1+\operatorname{tg}\varphi\operatorname{tg}\zeta}{1+\operatorname{tg}^2\varphi} = (A + B\operatorname{tg}\zeta) J_x^2 \tag{9}$$

$$W_y = E_y J_y = \varrho_y J_y^2 = -\varrho_f J_y^2 \frac{\sin(\varphi-\zeta)\cos\varphi}{\sin\zeta}$$

$$= -\varrho_f J_y^2 \frac{\operatorname{tg}\varphi-\operatorname{tg}\zeta}{(1+\operatorname{tg}^2\varphi)\operatorname{tg}\zeta} = -\left(\frac{C}{\operatorname{tg}\zeta} - D\right) J_y^2. \tag{10}$$

D'où la valeur du *rendement*

$$\eta = \left|\frac{W_y}{W_x}\right| = \operatorname{tg}\zeta \cdot \operatorname{tg}(\varphi-\zeta) \tag{11}$$

expression remarquablement simple qui, partant de 0 ($\zeta = 0$) croît continument jusqu'au *maximum* $\operatorname{tg}^2\varphi/2$ ($\zeta = \varphi/2$), puis se réduit de nouveau progressivement jusqu'à 0 (pour $\zeta = \varphi$); au-delà et en deçà, elle serait négative.

Remarque importante: tout est compté «vu de la lame». Or, l'énergie qu'elle retient sous forme de chaleur est le produit scalaire

$$W = (\vec{E}\cdot\vec{J}) = E J \cos\varphi. \tag{12}$$

Cette quantité doit être égale à la différence de l'importation suivant *ox* et de l'exportation suivant *oy*. On vérifiera qu'effectivement

$$W = W_x - |W_y|. \tag{13}$$

*) On pourrait tout aussi bien, cela va de soi, choisir comme paramètre ϱ_0 et comme variable l'$\measuredangle\xi$.

IV. Quelques autres relations. On peut établir, à l'aide du même diagramme les expressions les plus variées de «résistivités» et de «conductivités» tant longitudinales que transversales, ou encore «mixtes». Voici quelques exemples dont (14) et (15) publiés de longue date par l'auteur. Posant $\zeta = 0$ ou $\zeta = \varphi$

$$\varrho_h = E_y/J_x \approx RH \text{ ou } RB \tag{14}$$

$$\gamma_h = J_y/E_x = \varrho_h/\varrho_0\,\varrho_f \approx \varrho_h/\gamma^2\,(\varphi \text{ faible}) \tag{15}$$

$$\varrho_h = \gamma_h \varrho_0^2(1+\operatorname{tg}^2\varphi) \qquad \gamma_h = \varrho_h \cos^2\varphi/\varrho_0^2 . \tag{16}$$

$$\varrho_h \gamma_h = \frac{E_h}{J} \cdot \frac{J_\perp}{E} = \sin^2\varphi . \tag{17}$$

Il convient de rappeler que ϱ_0 et ϱ_f sont elles-mêmes fonctions de $\vec{H}$ ou de $\vec{B}$ et que leurs variations ne sont pas identiques.
On démontre en effet, en se rappelant

$$\frac{\delta\gamma}{\gamma} = -\frac{\delta\varrho}{\varrho(1+\delta\varrho/\varrho)}$$

$$\text{que } \frac{\delta\varrho_f}{\varrho} = \frac{\delta\varrho_0}{\varrho} + \left(1+\frac{\delta\varrho_0}{\varrho}\right)\operatorname{tg}^2\varphi \tag{18}$$

$$\text{et } \frac{\delta\gamma_0}{\gamma} = \frac{\delta\gamma_f}{\gamma} + \left(1+\frac{\delta\gamma_f}{\gamma}\right)\operatorname{tg}^2\varphi$$

ϱ et γ, résistance et conductivité en l'absence de champ magnétique.

Deux conséquences très simples. – Dans les recherches ou les applications, on est fréquemment conduit à considérer des phénomènes soit à *intensité primaire constante*, soit *à tension primaire invariable*. Les formules établies permettent de démontrer:

a) Que J_x *demeurant invariable, les extrémités des vecteurs* $\vec{E}$ (*champ résultant*) *et* $\vec{J}$ *se déplacent sur deux droites parallèles inclinées de* φ *sur l'axe oy* (*voir fig.*).

b) *Que* $\vec{E_x}$ *gardant la même valeur, les extrémités des vecteurs* $\vec{J}$ *glissent sur une droite inclinée de* φ *sur la direction ox.*

Particularités qui illustrent l'évolution générale des phénomènes à la simple inspection d'un graphique et peuvent efficacement simplifier la discussion de problèmes complexes.

On aura remarqué que l'exposé évite toute notion hypothétique (mobilités, autocourants, etc.). Intentionnellement, nous avons voulu ici n'utiliser que des grandeurs ressortissant à l'expérience.

V. Considérations thermodynamiques. – Nous avons relevé plus haut la raison de l'usage extensif de «résistivités». Pour faire ressortir qu'elles prennent des *valeurs négatives* dans la direction *oy*, nous avons écrit E_y

en valeur absolue (on excusera ce «Schönheitsfehler»). Ce qui implique *destruction de chaleur* dans les limites

$$0<\zeta<\varphi\,.$$

Rationnellement, il est préférable d'employer un autre langage que celui d'un effet Joule négatif: l'effet Joule proprement dit étant le produit scalaire $\vec{E}\,\vec{I}\cos\varphi$; nous dirons alors:

La composante magnétogalvanique transversale J_y du courant s'accompagne d'un effet calorifique positif ou négatif. Cette action n'est pas assimilable à un effet Thomson puisqu'elle se manifeste à température uniforme. Elle diffère encore de ce dernier comme de l'effet Peltier par une dépendance quadratique avec l'intensité du courant.

Or, ce fait n'est nullement paradoxal: *il est en effet imputable à une force électromotrice variant elle-même avec l'intensité.* L'auteur a signalé il y a longtemps déjà la nécessité de tels effets[4]), cela dans le cadre beaucoup plus général précisé ci-dessous.

Anisotropies et effets calorifiques transversaux. – Considérons une fois de plus une lame *à conductivité anisotrope* (naturelle ou provoquée par une contrainte extérieure), de forme rectangulaire, aux arêtes obliques sur les directions de symétrie du milieu (*ox* et *oy* toujours parallèles aux arêtes). On sait qu'*un courant suivant ox provoque une tension suivant oy.* Fermons un circuit sur cette tension transversale. Le courant qu'elle y entretient *prélève alors de l'énergie dans la lame,* ce bien entendu *aux dépens de l'énergie apportée par le courant ox.* Mais ce prélèvement ne peut s'effectuer qu'indirectement car le *champ électrique suivant oy est opposé au mouvement des charges dans cette direction* et ne peut trouver d'autre cause à un tel déplacement qu'un emprunt d'énergie cinétique moléculaire guidée quant à la direction par les dyssymétries structurelles. L'effet magnétocalorifique prévu plus haut est manifestement tout à fait comparable (qualitativement) à ce dernier. Pour les rapprocher davantage encore – en excluant toute action extérieure – il suffit d'évoquer une *lame douée d'aimantation rémanente normale à son plan. Un courant ox implique une force électromotrice suivant oy.* Le type de dyssymétrie est ici sans doute différent mais la dite force électromotrice n'est de nouveau plus constante: elle naît avec l'intensité primaire, et celle-là se fixant, elle varie avec l'intensité secondaire; les variations ne peuvent non plus être linéaires.

Et par cette autre voie, nous sommes ramenés tout naturellement à une publication antérieure de l'auteur[5]), où il exprime et justifie l'avis que la «*force électromotrice*» *de Hall* est en dernière analyse de *nature thermoélectrique.*

Quelques discussions à ce sujet lui font juger nécessaire de rappeler même dans ce résumé et nonobstant la clarté du fait que *les forces de*

Laplace-Lorentz ne sauraient fournir du travail, normales qu'elles sont à la vitesse des charges: *elles ne peuvent que commander la direction des quantités de mouvement, non en changer la grandeur.*

Mais il est d'autres rapprochements, apparemment naturels, et qui cependant ne se justifient plus, savoir avec l'effet von Ettingshausen (gradient transversal de température provoqué par l'effet Hall), avec encore l'effet Bridgman des milieux anisotropes.

Il n'est pas superflu de préciser le sens physique de ces discriminations. Bornons-nous ici à quelques brèves remarques à seule fin de dégager leurs source, remarques applicables, pensons-nous, à tous les mécanismes particuliers. Les deux phénomènes évoqués en dernier lieu sont essentiellement des conséquences de *transferts* (flux énergétiques accompagnant les courants) tandis que les manifestations thermiques décrites plus haut, bien que fonctions du courant, ont comme origine *du travail de forces localisées.*

Revenons aussi aux résistances, introduites systématiquement ici comme paramètres globaux de tronçons de circuit, lesquelles varient avec l'intensité et peuvent même être négatives. Phénomènologiquement, on peut les envisager comme comprenant deux composantes, l'une que l'on qualifiera de «passive» (ohmique au sens classique) par contraste avec l'autre, «active», de la nature de forces électromotrices.

Ce qui suggère l'observation suivante: dans des théories de la conduction basées sur l'hypothèse classique du gaz électronique, les interprétations (il en est de diverses) des anisotropies cristallines de la résistance peuvent, à tout prendre, se ramener à des «forces électromotrices intérieures» induites dans le réseau par le champ électrique et qui en dernière analyse se comportent thermoélectriquement.

Bibliographie (extrait)

[1]) A. Perrier, Lignes générales d'une théorie de la conduction métallique. – Arch. Sc. phys. et nat. (5) v. *9*, 343 (1927).
Id., Grandeurs et formules théoriques nouvelles, etc. et Interprétation unitaire, etc., Helv. Phys. Acta *3*, 347 et 400 (1930).

[2]) Outre, les publications ci-dessus, voir A. Perrier, Sur la liaison entres les effets magnétogalvaniques, etc. et Sur l'importance et l'origine des modes de description, etc., Helv. Phys. Acta, v. *25*, 615 (1952) et v. *28*, 312 (1955).

[3]) Notes diverses, Helv. Phys. Acta dès 1948.

[4]) Cf. A. Perrier, Transformations chaleur-énergie électrique par conduction anisotrope, Helv. Phys. Acta, v. *29*, 206 (1956).

[5]) A. Perrier, Interprétation thermoélectrique du magnétogalvanisme, Helv. Phys. Acta, v. *22*, 583 (1949) et Rectification, Helv. Phys. Acta v. *25*, 474 (1952).

[6]) A. Perrier, Hypothèse d'actions électromotrices intérieures et possibilité, etc. Bull. Soc. vaudoise, Sc. nat., v. *56*, 25 (1925).

Der Hall-Effekt in Supraleitern

von R. Jaggi
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH, Zürich)

Eine ausführliche Publikation erscheint demnächst.

Magnetische Suszeptibilität von Ladungsträgern in Ge-Si-Mischkristallen

von G. Busch, H. J. Stocker und O. Vogt
(Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich)

Die magnetische Suszeptibilität χ eigenleitender Ge-Si-Mischkristalle zeigt allgemein folgenden Temperaturverlauf: Zwischen 300 und 600° K nimmt der Diamagnetismus mit zunehmender Temperatur *linear* ab (Tieftemperaturast); erst für Temperaturen höher als 600° K gibt es je nach der Si-Konzentration systematische Abweichungen vom linearen Verlauf nach der diamagnetischen Seite hin. Die Abweichung ist am grössten für Ge und wird mit zunehmender Si-Konzentration kleiner; für Proben mit Si-Konzentration zwischen 60 und 100% wurde bis 1300° K keine Abweichung beobachtet.

Wir schreiben diese Abweichung der von den quasi-freien Ladungsträgern herrührenden Suszeptibilität χ_L zu. Für einen nichtentarteten Halbleiter[1]) mit j Sorten von Ladungsträgern gilt:

$$\chi_L = \frac{\mu^2}{\varrho \cdot kT} \cdot \sum_j n_j \left[1 - \frac{1}{3}\overline{\left(\frac{m}{m_j}\right)^2}\right] \tag{1}$$

wo ϱ die Dichte, n_j die Anzahl der Ladungsträger einer Sorte, $(m/m_j)^2$ das Quadratmittel der magnetisch wirksamen Freiheitzahl[1]) bedeutet.

Im Fall der Eigenleitung von Ge[2]) und Si befinden sich die meisten Leitungselektronen bzw. Löcher im tiefstliegenden Leitungsband bzw. in den höchstliegenden Valenzbändern, deshalb lässt sich jedes n_j in der Form $n_j \sim T^{3/2}\, e^{-\Delta E/2kT}$ darstellen. Somit wird:

$$\chi_L = A' \cdot T^{\frac{1}{2}} \cdot e^{-\frac{\Delta E}{2kT}} = A \cdot T^{\frac{1}{2}} \cdot e^{-\frac{\Delta E_0'}{2kT}} \tag{2}$$

mit

$$\Delta E = \Delta E_0' - \beta T\,.$$

Für Ge und Si lautet[1])[2]):

$$A = \frac{\mu^2 \cdot m^{3/2} \cdot k^{1/2}}{2^{1/2}\pi^{3/2} \cdot \hbar^3} \cdot \frac{e^{\beta/2k}}{\varrho} \cdot z^{1/2} \cdot (f_n \cdot f_p)^{-3/4} \cdot \left\{2 - \frac{1}{3}\left[\overline{\left(\frac{m}{m_n}\right)^2} + \overline{\left(\frac{m}{m_p}\right)^2}\right]\right\} \tag{3}$$

wo f_n bzw. f_p die für die Energieeigenwertsdichte massgebende Freiheitszahl der Elektronen bzw. Löcher, z die Multiplizität der Energieminima des Leitungsbandes bedeutet. Für das L_1-Band in Ge ist $z = 4$, für das Δ_1-Band in Si ist $z = 6$.

Mit bekannten ΔE-Werten lässt sich aus χ_L nach Gleichung (2) A berechnen und daraus nach Gleichung (3) $\overline{(m/m_n)^2} + \overline{(m/m_p)^2}$ bestimmen. Für Ge-Si-Mischkristalle haben bereits BRAUNSTEIN, MOORE und HERMAN[3]) die ΔE-Werte zwischen 300 und 80°K durch optische Messung bestimmt. Extrapolieren wir ihre ΔE-Werte nach hohen Temperaturen, so erhalten wir folgende repräsentative Werte $\overline{(m/m_n)^2} + \overline{(m/m_p)^2}$ in Funktion der Si-Konzentration:

Si-Konzentration in At.%	0	10	15	20	30	40	50	60–100
$\overline{\left(\frac{m}{m_n}\right)^2} + \overline{\left(\frac{m}{m_p}\right)^2}$	66 ± 5	65 ± 15	(60)	(47)	21 ± 6	$9{,}5 \pm 1{,}5$	8 ± 1	$\leqslant 8$

Die Auswertung für Proben mit Si-Konzentration zwischen 15 und 20% zeigt, dass dort der A-Wert in Gleichung (2) temperaturabhängig wird; er strebt jedoch mit zunehmender Temperatur einem Grenzwert zu. Die in der Tabelle in Klammern angeführten Werte entsprechen der Extrapolation $T \to \infty$. Dieses Verhalten kann man erklären, wenn man das Energiebandschema für die Ge-Si-Mischkristalle nach HERMAN[4]) zugrunde legt. Gerade bei diesem kritischen Konzentrationsgebiet liegen die beiden Leitungsbänder Δ_1 und L_1 sehr nahe ($\Delta E_1 - \Delta E_2 < kT$). Die Anzahl der Elektronen n_1 bzw. n_2 im Band Δ_1 bzw. L_1 sind also vergleichbar. Im Fall der *Eigenleitung* folgt hier aus Gleichung (1):

$$\chi_L = \frac{\mu^2}{\varrho \cdot kT} \cdot (n_1 + n_2) \cdot \left\{2 - \frac{1}{3}\left[\overline{\left(\frac{m}{m_n}\right)^2} + \overline{\left(\frac{m}{m_p}\right)^2}\right]\right\}$$

$$\text{mit } n_1 + n_2 = \frac{m^{3/2}}{2^{1/2}\pi^{3/2} \cdot \hbar^3} \cdot (kT)^{3/2} \cdot f_p^{-3/4} \cdot \left[z_1 f_1^{\frac{3}{2}} e^{-\frac{\Delta E_1}{kT}} + z_2 f_2^{\frac{3}{2}} e^{-\frac{\Delta E_2}{kT}}\right]^{1/2},$$

$$\overline{\left(\frac{m}{m_n}\right)^2} = \frac{z_1 f_1^{-3/2} e^{-\frac{\Delta E_1}{kT}} \cdot \overline{\left(\frac{m}{m_1}\right)^2} + z_2 f_2^{-3/2} e^{-\frac{\Delta E_2}{kT}} \cdot \overline{\left(\frac{m}{m_2}\right)^2}}{z_1 f_1^{-3/2} e^{-\frac{\Delta E_1}{kT}} + z_2 f_2^{-3/2} e^{-\frac{\Delta E_2}{kT}}}.$$

Der Index 1 bzw. 2 bezieht sich auf das Band Δ_1 bzw. L_1. Danach strebt der Wert $\overline{(m/m_n)^2}$ für $T \to \infty$ einem Grenzwert zu.

Zusammenfassend lassen sich folgende Aussagen über die Konzentrationsabhängigkeit der effektiven Massen machen:

1. Für 100–60% Si wird ein relativ kleiner Wert $\overline{(m/m_n)^2} + \overline{(m/m_p)^2} \leqslant 8$ abgeschätzt. Vermutlich bleiben hier die effektiven Massen im wesentlichen konstant.

2. Zwischen 50 und 15% Si erfolgt die grösste Änderung.

a) Für 15–20% Si können die Messresultate dadurch erklärt werden, dass die Leitungsbänder L_1 und $\bar{L}_1$ eng benachbart und somit gleichzeitig wirksam sind.

b) Zwischen 30 und 50% Si ist die Änderung von $(m/m_n)^2 + (m/m_p)^2$ auffallend gross. Weil das Band L_1 sicher nicht mehr wirksam ist, muss die Änderung allein durch das Band $\bar{L}_1$, höchstens zum Teil durch die Valenzbänder, bedingt sein.

3. Für 15–0% Si liegen die Werte $(m/m_n)^2 + (m/m_p)^2$ zwischen 60 und 80 und bleiben annähernd konstant.

Literatur

[1]) G. Busch, Halbleiter und Phosphore, S. 158 (1958), herausgegeben von M. Schön und H. Welker.
[2]) Ch. Enz, Helv. Phys. Acta *28*, 158 (1955).
[3]) R. Braunstein, A. R. Moore und F. Herman, Phys. Rev. *109*, 695 (1958).
[4]) F. Herman, Phys. Rev. *95*, 847 (1954).

Relations entre la structure cristalline et les propriétés électriques du sulfure d'argent Ag_2S

par G. Busch et P. Junod
(Laboratoire de physique du corps solide, E.P.F., Zurich)

1. *Introduction*

La conductibilité électrique de Ag_2S donna lieu à une controverse animée entre de nombreux auteurs, dont Tubandt et Wagner. Le premier, en effet, mesurait une conductibilité ionique[1]), tandis que Wagner[2]) était partisan d'une conductibilité électronique. On admet aujourd'hui que dans la phase α ($T > 180°C$), Ag_2S est un conducteur électronique pur. La phase β ($T < 180°C$) peut, suivant la stoechiométrie, présenter quelques pour-cent de conductibilité ionique.

Ag_2S est également intéressant du point de vue cristallin. A 20°C, la cellule élémentaire est rhomboédrique; à 180°C intervient un changement de phase allotropique du 1er ordre, et la cellule élémentaire devient cubique, centrée intérieurement[3])[4]).

Le but de ce travail était de préparer du sulfure d'argent stoechiométrique de grande pureté, et d'en mesurer les propriétés électriques dans les deux phases. Une étude des zones de Brillouin a permis d'interpréter les résultats de façon satisfaisante.

*

2. *Résultats et interprétation*

Du point de vue qualitatif, les résultats sont très semblables à ceux obtenus pour le séléniде d'argent, publiés récemment[5]). La conductibilité électrique (fig. 1) présente de façon très distincte, deux domaines bien définis:

1° aux températures $T < 180°C$ Ag_2S est un semi-conducteur possédant une énergie d'activation ΔE d'environ 1 eV;

2° dès que l'on passe dans la phase supérieure ($T > 180°C$), la conductibilité électrique σ subit une discontinuité, et augmente brusquement

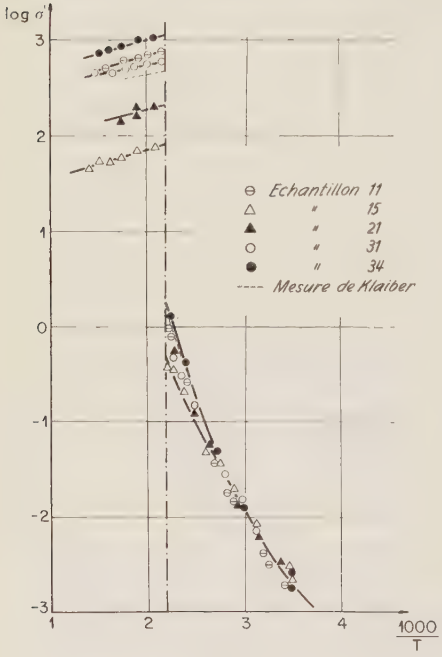


Fig. 1
Conductibilité électrique de Ag_2S

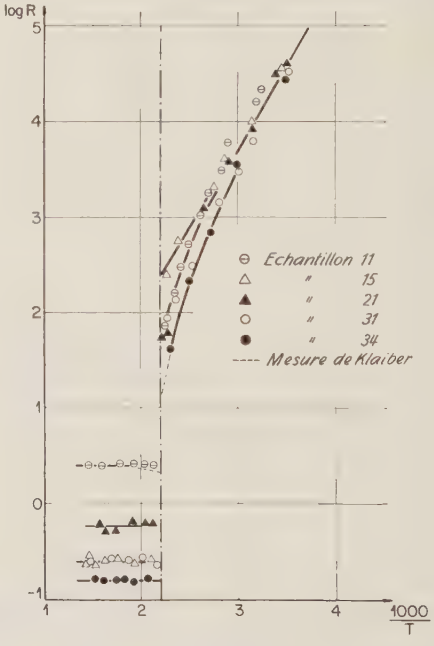


Fig. 2
Effet Hall de Ag_2S

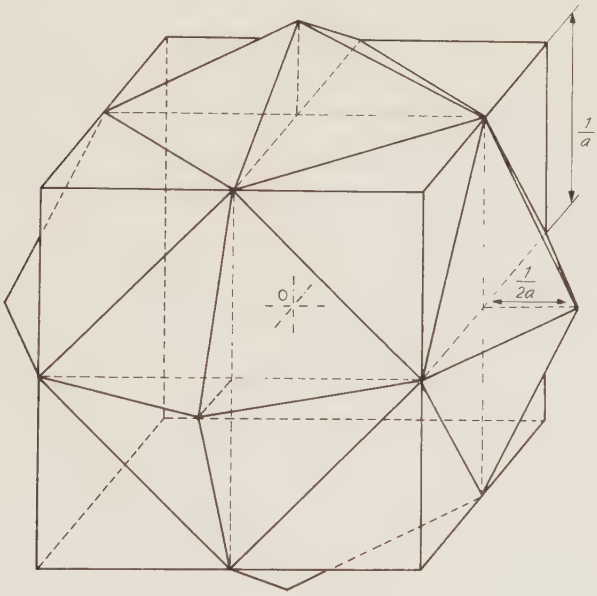
d'un facteur pouvant atteindre 10^3. Dans la phase supérieure, la variation de σ en fonction de la température est semblable à celle d'un métal.

L'effet Hall (fig. 2) présente dans son ensemble un caractère analogue. A 180°C, R diminue brusquement, ce qui correspond à une augmentation de la densité des porteurs de charges, puis reste constant.

Une étude des zones de Brillouin permet de comprendre aussi bien le caractère semi-conducteur de la phase β, que le caractère métallique de la phase α.

Phase β: Cette phase étant semi-conductrice, il suffit de rechercher une zone pouvant contenir 8/3 d'électrons par atome. Une telle zone se construit facilement à l'aide des plans (002) et (220) qui sont les plus intenses dans les diagrammes de diffraction électronique de BOETTCHER.

Phase α: Un calcul des facteurs de structure dans cette phase cubique centrée intérieurement montre que dans l'espace $\vec{k}$ $(k - 2\pi/\lambda)$, une discontinuité de l'énergie des électrons intervient lorsque l'on traverse les plans (200) et (211). Ce fait est également confirmé par les résultats de



Cube: plans (200) Polièdre: plans (211)

Fig. 3

Zones de Brillouin de α-Ag_2S

BOETTCHER. La figure 3 montre les différentes zones que l'on peut construire à l'aide de ces familles de plans. Le cube limité par les plans (200) ayant un volume de $8/a^3$ pourrait contenir exactement le nombre disponible d'électrons de valence et α-Ag_2S devrait être semi-conducteur. Les volumes situés entre les sommets de ce cube et les plans (211) (volume $1/a^3$) correspondent à des états d'énergie plus élevés que ceux situés entre les faces du cube et les mêmes plans (211) (volume $2/a^3$). La moitié seulement de cette dernière zone étant occupée α-Ag_2S doit être métallique, ce qui est en accord avec nos mesures.

Bibliographie

[1]) C. Tubandt, Hdb. Exp. Phys. XII/1, 384 (1932).
[2]) C. Wagner, Z. Phys. Chem., B. *23*, 469 (1933).
[3]) P. Rahlfs, Z. Phys. Chem., B. *31*, 157 (1936).
[4]) A. Boettcher, G. Haase et H. Treupel, Z. angew. Phys. *7*, 478 (1955).
[5]) G. Busch et P. Junod, Helv. Phys. Acta *30*, 470 (1957).

Sur la conductivité calorifique des métaux ferromagnétiques

par L. Berger
(Laboratoire de Physique de l'Université de Lausanne)

En ce qui concerne les métaux ferromagnétiques, de nombreux travaux expérimentaux[1]) ont déjà étudié leur conductivité électrique dans un champ magnétique. Dans certains alliages fer-nickel ou nickel-cobalt, les variations relatives de conductivité électrique, dues au champ magnétique, atteignent 20% à basse température.

Par contre, la conductivité calorifique en champ magnétique des métaux ferromagnétiques n'est que très mal connue[2]).

La présente communication décrit quelques mesures de conductivité calorifique effectuées sur un spécimen de ferronickel à 76,4% de nickel en poids, à la température de 82 °K.

La méthode de mesure est la suivante: la différence de température entre deux points du spécimen, placé dans le vide et parcouru par un courant de chaleur connu, est mesurée au moyen de deux thermomètres à résistance de carbone; l'avantage du carbone est de permettre des mesures à la température de l'air liquide comme à celle de l'hélium liquide. Les thermomètres sont placés dans deux bras d'un pont de Wheatstone, de telle manière que le galvanomètre du pont donne directement la différence des températures. Enfin les indications de ce galvanomètre sont transmises à un enregistreur à plume, par l'intermédiaire d'un suiveur de spot électronique. On en tire la conductivité calorifique, ou son inverse la résistivité calorifique ϱ_{cal}.

La figure 1 donne les résultats obtenus dans des champs transversaux au courant de chaleur. Ces champs, produits par un électroaimant, vont jusqu'à 2,2 Vs/m² (22000 G). Comme le spécimen a la forme d'un cylindre allongé transversal au champ, il y a un champ démagnétisant très notable, pour lequel aucune correction n'a été apportée. Sur la même figure, sont portés également les résultats de mesures de la résistivité électrique $\varrho_{él}$, qui ont été faites sur le même spécimen et dans les mêmes conditions.

On voit que l'effet du champ magnétique sur ϱ_{cal} est analogue à l'effet sur $\varrho_{él}$, quoique plus faible dans un rapport qui vaut environ 0,55.

De même, la figure 2 donne les résultats obtenus dans des champs parallèles au courant de chaleur. Ces champs, produits par un solénoïde, vont jusqu'à 0,15 Vs/m² (1500 G). Le quotient de la longueur au diamètre du spécimen étant 17, le champ démagnétisant est beaucoup plus faible que dans les mesures à champ transversal. De nouveau aucune correction de champ n'est faite. On voit que l'effet du champ magnétique sur ϱ_{cal} est de nouveau analogue à l'effet sur $\varrho_{él}$, et plus faible dans un rapport qui vaut de nouveau environ 0,55. La précision relative des mesures est moins satisfaisante cependant que dans le cas du champ transversal.

Ces résultats peuvent s'interpréter par l'existence d'une conduction calorifique notable par les phonons; si l'on admet la validité de la loi de Wiedemann-Franz, et si la conduction par les phonons est supposée

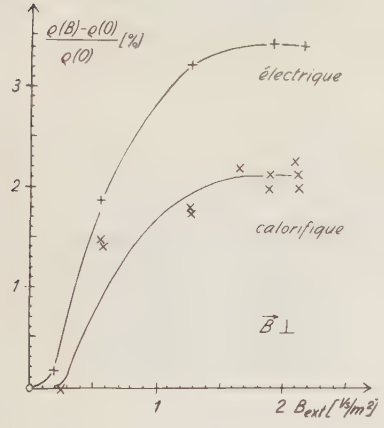


Fig. 1
Champ transversal aux courants. Variations relatives de ϱ_{cal} et $\varrho_{él}$, *changées de signe.*

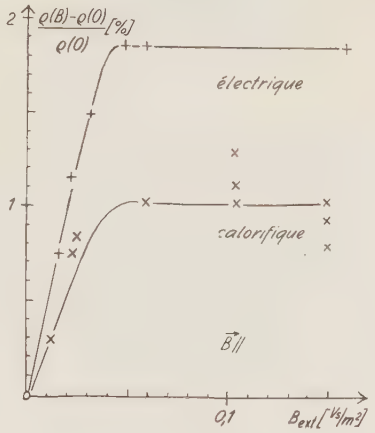


Fig. 2
Champ parallèle aux courants. Variations relatives de ϱ_{cal} et $\varrho_{él}$, *données avec leur vrai signe.*

ne pas varier avec le champ magnétique, on peut même déterminer l'importance relative de cette conduction par les phonons. Cependant, Friedberg et Douthett ont trouvé récemment[3]), dans des ferrites, une conduction par les phonons variable avec le champ magnétique.

Il est à noter que le spécimen utilisé dans ces premières mesures se trouve dans l'état non recuit. On remarquera à ce propos que les effets à champ parallèle sont loin de valoir le double des effets à champ transversal correspondants, mais sont même plus petits; voir à ce propos un mémoire de Bittel[4]). L'intérêt des présentes mesures se trouve donc surtout dans la comparaison entre effets calorifiques et effets électriques, sur le même spécimen.

Je tiens à remercier le Fonds National de la Recherche Scientifique pour l'équipement cryogénique mis à disposition, ainsi que le Prof. D. Rivier et le Dr L. Rinderer pour les discussions que j'ai pu avoir avec eux.

Bibliographie

[1]) Seitz et Turnbull, Solid State Physics (Academic Press, 1957), Vol. *5*, article par J. P. Jan, p. 67.
[2]) W. Meissner, Handbuch der Experimentalphysik (Akademische Verlagsgesellschaft, Leipzig 1935), Vol. *11*, 2e partie, p. 384.
[3]) Douthett et Friedberg, Bull. Amer. Phys. Soc., Vol. *3*, 226 (1958).
[4]) H. Bittel, Annalen der Physik, Vol. *31*, 219 (1938).

Ein transistorisiertes Mehrkanal-System zur Registrierung von Vibrationen auf Magnetband

von P. Koch (Eidg. Amt für Mass und Gewicht, Bern)

Im Eidgenössischen Amt für Mass und Gewicht wird eine Anlage entwickelt, die es gestattet, eine grosse Anzahl Kanäle mit einer Bandbreite von je 150...200 Hz auf Magnetband zu registrieren. Die Apparatur soll dort eingesetzt werden, wo die photographische Registrierung infolge ihrer beschränkten Kanalzahl und Bandbreite versagt. Dies trifft vor allem bei der Registrierung von Vibrationen zu, das Gerät soll aber so wenig wie möglich spezialisiert werden.

Die Anforderungen, welche dem Entwurf zugrunde lagen, sind die folgenden:

1. Möglichst viele Einzelkanäle. (Gegenwärtig 4 pro Spur, 8 Spuren auf 12,7-mm-Band).

2. Bandbreite pro Kanal ca. 200 Hz.

3. Möglichkeit, n-Kanäle zu einem einzigen von n-facher Bandbreite zu vereinigen. (Gegenwärtig $n = 1, 2, 4$.)

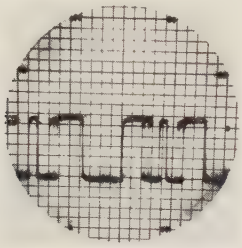
4. Genauigkeit der Messung ca. $\pm$ 2..3%.

5. Die Aufnahme soll auch in Fahrzeugen möglich sein. Gewicht, Ausmasse, Stromverbrauch müssen gering bleiben, ebenfalls die Anforderungen an die Stabilität der Speisespannungen und die Empfindlichkeit auf mechanische Störungen.

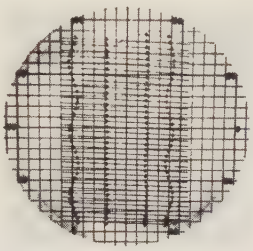
6. Die Aufnahmen sollen mit stark veränderter Geschwindigkeit abgespielt werden können (ca. $\pm$ 1 Oktave).

Als Modulationsart wurde Impulslage-Modulation gewählt, einerseits wegen der Forderung 6, anderseits weil die Variation der Impulslage, auf dem Umweg über die Phasenmodulation einer Hilfsschwingung, sich mit

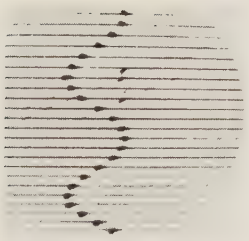
einfachen Brückenschaltungen realisieren lässt[1]). Die Modulation geschieht durch das Messelement, und infolge des Wegfalls von Modulationsverstärkern verursacht die Übertragung der Frequenz 0 keine Schwierigkeiten. Das System ist also statisch eichbar. Die Messgrössen sind dargestellt durch das Verhältnis zweier Grössen derselben Dimension, nämlich der Verschiebung von Impulsen einerseits und dem Abstand zweier



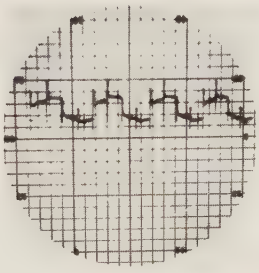
1



2



3



4

1 Der aufgenommene Impulszug. Eine kleine Quadratseite = 100 μs. Flanken 1 und 4 moduliert, dazwischen das schmale Referenzrechteck.
2 Der Impulszug aus 1, vom Magnetband abgespielt. Die linken Zeilenanfänge stimmen mit der zweiten Flanke des Referenzrechtecks überein, dann folgen die Kanäle 1...4. Man beachte das rückwärts wirkende Nebensprechen.
3 Detail aus 2.
4 Wirkungsweise des extrapolierenden Filters. Ableitung und Krümmung etwas schwach gehalten, um nicht eine Frequenz zu stark hervorzuheben.

Referenzimpulse andererseits. Diese dimensionslose Darstellung erlaubt das Abspielen mit variabler Geschwindigkeit.

Das Magnetband wird ständig in der einen oder andern Richtung gesättigt, in der Absicht, Kopiereffekte möglichst zu vermeiden. Gleichzeitig wird der Aufbau des Abspielverstärkers dadurch vereinfacht, weil die Ausgangsspannung des Magnetkopfes relativ hoch wird.

Der gesamte Impulszug einer Magnetspur hat eine Repetitionsfrequenz von 800 Hz und besteht aus 6 Vorzeichenwechseln, also 3 Rechtecken.

Jeder der 4 Kanäle moduliert nur eine Flanke, 2 Flanken bilden das Referenzrechteck, dessen Kennzeichen seine minimale Breite ist (ca. 80 μs, gegenüber ca. 160... 360 μs für die Abstände benachbarter modulierter Flanken). Die maximale Modulation von $\pm$ 50 μs entspricht einem Phasenwinkel von $\pm$ 15° und gewährleistet eine genügende Linearität. (Der Messwert ist proportional dem Tangens des Phasenwinkels).

Bei der Wiedergabe wird der Referenzimpuls nicht am Absolutwert seiner Dauer erkannt, sondern durch Vergleich mit der Dauer der übrigen Rechtecke. Dieses Verfahren ist wieder weitgehend geschwindigkeitsunabhängig. Die durch den Vergleich herausgefundene zweite Flanke des Referenzrechteckes steuert eine aus Flip-Flop bestehende Schaltung, welche die 4 folgenden Kanalimpulse auf die 4 Ausgangsleitungen der Abspielapparatur leitet. Daneben synchronisiert diese Bezugsflanke eine Sägezahnspannung von gleicher oder 2..4-facher Frequenz, welche zur Umwandlung der Impuls-Lagen in Impuls-Höhen verwendet wird.

Die Sägezahnspannung wird durch automatische Regelung eines Kondensator-Ladestromes unabhängig von der Repetitionsfrequenz auf konstanter Amplitude gehalten. Kleine Schwankungen dieser Amplitude, durch rasche Variationen in der Bandgeschwindigkeit verursacht, können als Korrekturspannungen auf die Kanalausgänge verteilt werden, wie dies von den FM-Systemen her bekannt ist.

Die so gewonnenen 800 Momentanwerte pro Kanal werden einer Filterschaltung zugeführt, welche gewisse extrapolierende Eigenschaften hat[2]). Sie besteht im wesentlichen aus einem Integrator, welcher einen Momentanwert solange hält, bis dieser durch einen neuen abgelöst wird. Diesem Integrator wird zusätzlich ein Ladestrom zugeführt, welcher proportional der Höhe des Sprunges vom letzten auf den momentan gehaltenen Funktionswert ist. Dadurch wird eine lineare Extrapolation auf den vermutlichen nächsten Funktionswert hin erreicht. Es ist dann noch möglich, diesen Ladestrom durch die Grösse des Funktionswertes so zu beeinflussen, dass die Extrapolationskurve eine gewisse Krümmung erhält und sich (optimal nur für eine Frequenz!) der Modulationsfunktion einigermassen anschmiegt.

Als Bandgeschwindigkeit wurde 19 cm/s gewählt, um Antriebsenergie zu sparen und eine möglichst lange Registrierzeit zu erzielen. Die angegebenen Frequenzen sind auf diese Geschwindigkeit und die dabei erzielbaren Leistungen des Magnetkopfes abgestimmt. Leider hat sich bei den Versuchen ein ganz unerwarteter Effekt gezeigt, welcher eventuell dazu zwingen wird, die Bandgeschwindigkeit zu erhöhen: die variable Lage einer Impulskante wirkt auf die früher magnetisierten Impulse ein und vermag deren Grenzen nachträglich noch zu verschieben. Dadurch entsteht ein beträchtliches einseitiges Nebensprechen von jedem Kanal

auf den jeweils vorangehenden. Der Einfluss lässt sich über mehr als der halben Dauer der Grundperiode, das sind ca. 600 μs oder 120 μm, erkennen. Diese Länge ist von derselben Grössenordnung wie die gelegentlich angeführte Grenzwellenlänge, von welcher an das Feld der magnetisierten Bereiche nur noch geschwächt aus dem Band austritt. Eine blosse Kompensation des Effektes innerhalb der Abspielapparatur ist denkbar, sofern das Band rückwärts abgespielt werden darf.

Literatur

[1]) Upham/Dranetz, Transistor Modulator for Airborne Recording. Electronics, Juni 1956, S. 167.

[2]) Lars Lofgren, Predictors in Time-Shared Analog Computors. Actes Journées Internationales de Calcul Analogique, 1955 (Librairie Encyclopédique, Bruxelles).

Ein dekadischer Transistoruntersetzer mit hohem Auflösungsvermögen

von E. Baldinger, P. Santschi und P. Wehrli

(Physikalische Anstalt der Universität, Abteilung für angewandte Physik, Basel)

Die bereits früher beschriebene duale Untersetzerschaltung[1]) konnte durch passende Wahl der Gleichstromdaten bezüglich ihrer Toleranzen wesentlich verbessert werden. Mit einer Kombination von Philco-Transistoren 2N 128 und SB 100 erreicht man ein Auflösungsvermögen von 50 mμs, wobei die Schaltung gute Toleranzen aufweist (Änderungen der Werte der Schaltelemente von min. $\pm$ 5% sind zulässig). Die obere Grenze des Auflösungsvermögens liegt bei 40 mμs (25 MHz).

Mit dieser dualen Stufe wurde nach einem bereits von Röhrenschaltungen her bekannten Prinzip[2]) ein dekadischer Untersetzer gebaut. Bei einem Auflösungsvermögen von 100 mμs (10 MHz) sind Änderungen der Werte der Schaltelemente um ca. $\pm$ 5% zulässig. Die obere Grenze des Auflösungsvermögens liegt bei 13 MHz, und wird im wesentlichen durch die Laufzeit in den drei letzten Untersetzerstufen bestimmt.

Die Begrenzung des Auflösungsvermögens durch Laufzeiteffekte lässt sich bei dekadischen Untersetzern prinzipiell vermeiden, wenn man duale Stufen und Fünferringe hintereinander schaltet. So kann man z. B. unter Verwendung von zwei dualen und zwei Fünfer-Stufen einen 100-fach-Untersetzer bauen, dessen Auflösungsvermögen dem der ersten dualen Stufe, die eingangs erwähnt wurde, entspricht. Die für diese Schaltung notwendigen 5-fach-Untersetzer mit einem Auflösungsvermögen von 200 mμs (5 MHz) wurden von uns entwickelt. Naturgemäss wird für eine derartige Schaltung die Interpolation kompliziert.

Eine ausführliche Publikation über diese Untersuchungen erscheint demnächst.

Der Stiftung Hasler-Werke Bern und der Kommission des Bundes zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung danken wir für die finanzielle Unterstützung.

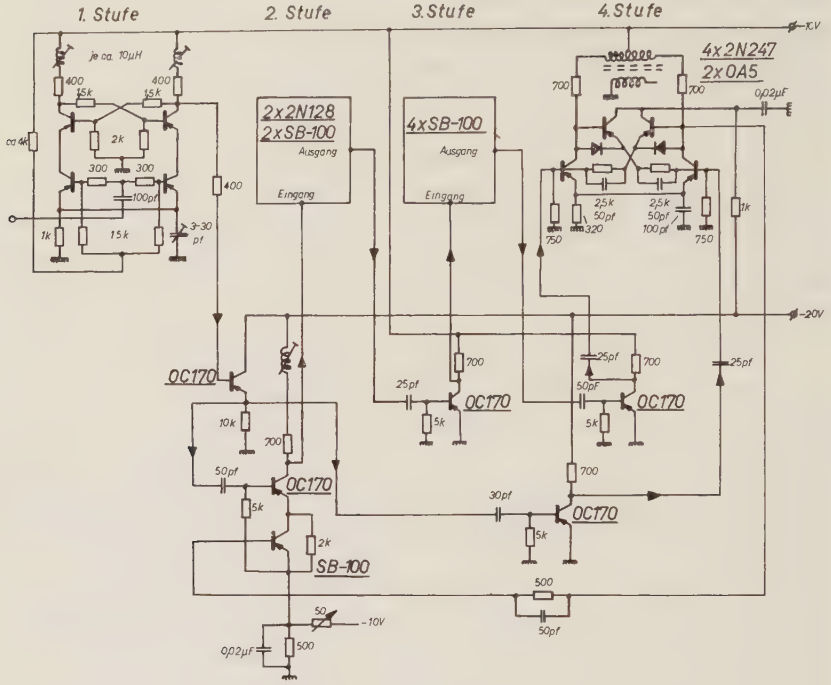


Fig. 1
Schema des dekadischen Transistor-Untersetzers

Literatur

[1]) E. Baldinger und P. Santschi, ZAMP *9*, 88–90 (1958); Nuclear Instruments *2* 128–129 (1958).

[2]) E. L. Kemp, Electronics *26*, Nr. 2, 145–157 (1953). – D. E. Cottrell, Electronics *30*, Nr. 11, 186–189 (1957). – H. C. Chisholm, Electronics *30*, Nr. 6, 171–173 (1957).

Etude sur la théorie de l'électron

par R. M. Berthier
(Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques, Grenoble)

Les Physiciens ont soudainement abandonné, vers 1928, l'étude structurale de l'électron dans le cadre de la théorie classique, peu après la découverte du spin par Uhlenbeck et Goudsmit, et dès que furent constatées les impasses auxquelles paraissait aboutir la théorie de l'électron tournant.

Les hommes de science de ma génération, qui ont eu la bonne fortune d'assister à toute la transformation de la physique, en avaient été vivement frappés, et avec beaucoup d'autres je pense encore que cet abandon a été regrettable à divers points de vue. Le grand Physicien L. DE BROGLIE lui-même, demandait récemment que l'on revienne à cette étude[1]).

Je vais montrer par deux exemples que la théorie classique peut être prolongée et certaines impasses supprimées. Le cadre axiomatique de cette étude doit être précisé: il comprendra l'électrodynamique classique de MAXWELL-LORENTZ, la relativité restreinte, et la quantification selon BOHR.

1° *Anomalie gyromagnétique*

Le rapport, dit gyromagnétique, du moment cinétique au moment magnétique pour des électrons en mouvement sur des trajectoires circulaires, vaut

$$g = \frac{M}{\mathfrak{M}} = 2\frac{m_v}{\varepsilon}$$

(m_v masse de l'électron ε calculée en mouvement de translation).

L'expérience montre que, pour l'électron tournant considéré seul, ce rapport vaut

$$g_S = \frac{m_v}{\varepsilon}$$

Le calcul sembla justifier cette valeur[2]).

En réalité, si l'on calcule la masse m_ω de l'électron dans son mouvement propre de rotation suivant le même processus mathématique qui sert à calculer la masse m_v, on trouve aisément que $m_\omega = 1/2\, m_v$ en sorte que

$$g_S = \frac{2\, m_\omega}{\varepsilon}.$$

On est en droit de dire qu'*il n'y a pas d'anomalie gyromagnétique* si l'on attribue à chaque type de mouvement de l'électron la masse qui lui correspond. Cela n'est légitime que si l'on démontre de plus qu'il n'y a pas d'interaction entre les valeurs des masses et des énergies pour le spin d'une part et pour l'électron en mouvement normal d'autre part, ce qui se fait aisément par des considérations de symétrie.

2° *Dimensions de l'électron*

Les calculs faits par UHLENBECK et GOUDSMIT[3]) conduisaient, en utilisant le rayon classique de l'électron, à une vitesse périphérique V de 300 c, et la gravité apparente de cette impasse fut une des raisons de l'abandon de la théorie classique de l'électron. Or, ce calcul est erroné.

On ne peut attribuer la valeur numérique connue de la *masse mesurée* μ à la *masse calculée* m_v comme on le fait dans le calcul rappelé ci-dessus, pour deux raisons: d'une part l'électron non tournant n'existe pas, et, d'autre part, en raison de la valeur élevée de la vitesse V, la masse μ est forcément la valeur *relativiste*, non pas de m_v mais de $m_\omega = m_v/2$.

Il faut alors attribuer à l'électron réel une vitesse V inférieure à c, avec

$$\chi = \frac{c-V}{c} \quad \text{et} \quad \sqrt{1-\beta^2} = \sqrt{2\chi}$$

$$\text{On tire de là} \begin{cases} a' = 3{,}9 \cdot 10^{-11} \text{ cm} \\ \chi = 5{,}6 \cdot 10^{-5} \end{cases}$$

(a' valeur nouvelle du rayon a).

Ainsi l'électron à spin est nécessairement beaucoup plus gros qu'il n'avait été prévu dans la théorie de l'électron non tournant. De plus, il faut prévoir qu'il ne peut être sphérique. Les densités électriques disposées sur lui le long des parallèles s'attirent par effet électrodynamique. La symétrie sphérique de l'électron non tournant est détruite et la forme d'équilibre se rapproche d'une sorte d'anneau disposé sur un ellipsoïde extrêmement aplati, le rayon de giration se confondant pratiquement avec le rayon d'équateur. Toutefois une théorie complète pose d'autres problèmes et nécessite d'autres hypothèses qui ne peuvent trouver place ici.

Bibliographie

[1]) Nouvelles perspectives en Microphysique, 1956, p. 141.
[2]) Max Abraham, Ann. de Phys. X, p. 168; Uhlenbeck et Goudsmit, Physica VI, p. 273.
[3]) L. Brillouin, Atome de Bohr, PUF 1931.

Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von einigen *u-g*-Kernen

von J. de Boer, M. Martin und P. Marmier
(Cyclotron-Laboratorium, ETH, Zürich)

Die elektromagnetische Anregung der Kerne Eu-153, Gd-157, Dy-163, Hf-177, Hf-179, Re-185 und Re-187 wurde mit Hilfe von 4 MeV-Protonen untersucht, indem Energie, Ausbeute und Winkelverteilung der Zerfallsgammastrahlung gemessen wurden. Je 35 mg der vom Oak Ridge National Laboratory gelieferten angereicherten Isotope (Oxyde von Eu, Gd, Dy und Hf, Metallpulver von Re) wurden zu einer Pille gepresst und mit Perocellinlack auf einer Nickelunterlage befestigt.

Die gewonnenen Resultate sind in Tabelle 1 wiedergegeben. Die einzelnen Kolonnen haben folgende Bedeutung:

E_γ = Gammaenergie.
$\varepsilon \cdot B(E2)_{ex}$ = Übergangswahrscheinlichkeit für E2-Anregung.
$B(E2)_{ex}$ = reduzierteÜbergangswahrscheinlichkeit für E2-Anregung.
$B(M1)$ = reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit für M1-Zerfall.
%E2 = aus der Winkelverteilung bestimmter Anteil der E2-Strahlung.
$\Im$ = Trägheitsmoment.
Q_0 = inneres Quadrupolmoment.
g_R = gyromagnetischer Faktor der inneren Nukleonenbewegungen.
g_K = gyromagnetischer Faktor der kollektiven Rotation.

Eine ausführliche Arbeit wird demnächst in der Helv. Phys. Acta erscheinen.

Tabelle 1

Zusammenfassung der Messergebnisse

Isotop (Anreicherung)	E_γ keV	$\varepsilon B(E2)_{ex}$ $e^2 \cdot 10^{-48}$ cm^4	$B(E2)_{ex}$ $e^2 \cdot 10^{-48}$ cm^4	$B(M1)$ $\left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2$	%E2	$\frac{\hbar^2}{2\Im}$ keV	Q_0 10^{-24} cm^2	g_R	g_K
$_{63}Eu^{153}$ (95,0%)	83	0,56	2,4			11,9	7,1		
	191	0,33	0,77		100%	11,9	6,8		
	108	0,124		0,012	49%			0,47	0,65
$_{64}Gd^{175}$ (69,7%)	(55)								
	130	0,16	3,8		100%	10,8	11,5		
	75	0,65		0,44	2,5%			0,65	−0,86
$_{66}Dy^{163}$ (74,0%)	74	0,84	7,2			10,6	12,1		
	167	0,46	1,16		100%	10,4	8,8		
	94	0,114		0,0032	88%			0,26	0,18
$_{72}Hf^{177}$ (62,2%)	112	1,35	4,3			12,5	10		
	250	0,59	1,08		100%	12,5	10		
	138	0,18		0,0079	90%			0,25	0,20
$_{72}Hf^{179}$ (47,5%)	122	0,94	2,5			11,1	8,2		
	272	0,075	0,42		100%	11,3	7,4		
	149	0,144		0,34	8%			0,34	−0,20
$_{75}Re^{185}$ (85,8%)	128	0,77	2,0			18,3	6,5		
	287	0,039	0,83		100%	17,9	7,1		
	159	0,36		0,80	3,5%			0,32	1,64
$_{75}Re^{187}$ (98,8%)	132	0,69	1,7			18,8	5,9		
	300	0,053	0,70		100%	18,7	6,5		
	166	0,31		0,46	5,0%			0,56	1,56

Sur la réaction $K^{40}(n_{th}, p)\ A^{40}$

par J. Rossel et J. Weber
(Institut de Physique, Université de Neuchâtel)

Un compte rendu de ce travail paraîtra prochainement dans Helv. Phys. Acta.

Streuung von 3,27-MeV-Neutronen an Deuteronen

von H.-J. Gerber, M. Brüllmann, D. Meier
(Physikalisches Institut der ETH, Zürich)

Es wurde die Polarisation $P_2(\vartheta)$ für die elastische Streuung von 3,27-MeV--Neutronen an Deuteronen unter dem Winkel $\vartheta_{Spt} = 53°$ mit Hilfe einer schnellen Flugzeitapparatur gemessen. Wir erhalten

Streuwinkel		$P_2(\vartheta)$
β_{Lab}	ϑ_{Spt}	$(+15 \pm 8)\%$
36°	53°	

Korrekturen wurden angebracht für Absorption im Streukörper und für Mehrfachstreuung. Der angegebene Fehler berücksichtigt nebst der statistischen Ungenauigkeit auch apparative Fehlerquellen.

Die Messmethode wurde früher beschrieben[1]). Wir beschränken uns hier im wesentlichen auf den elektronischen Teil.

Das gestreute Neutron und das Rückstossdeuteron (Fig. 1) lösen je einen Lichtblitz vor einer RCA-6810-Photovervielfacherröhre aus in einem zeitlichen Abstand, der gleich der Flugzeit des Neutrons zwischen Streukörper und Neutronenzähler ist. Die negativen Anodenimpulse der 6810 stellen den Ruhestrom in der nachfolgenden Begrenzerröhre (E 180 F) ab und erzeugen somit an deren Anode positive Impulse. ($V \leqslant 3{,}8$ V). Diese gelangen auf die Kabel (RG 114/U) und treiben einen EFP60-Diskriminator. (Schaltung nach Moody[2])). Eine Impulsformerstufe bestehend aus Begrenzerröhre (E 180 F) und kurzgeschlossenem Kabelstück verwandelt die Ausgangsimpulse des Diskriminators in Rechtecke von exakt gleicher Höhe (+ 1,85 V) und Länge ($T = 35 \times 10^{-9}$ sec). Der zeitliche Abstand eines Rechteckes herrührend vom Rückstossdeuteronenzähler und eines solchen vom Neutronenzähler wird nun durch Messung der Überlappung bestimmt. Zu diesem Zwecke gelangen die beiden Rechtecksimpulse je auf ein Steuergitter einer doppelgesteuerten Heptode (E 91 H), welche nur während der Überlappung leitet. Die Ladung wird an der Anode aufsummiert. (RC der Anode gross gegen T.) Die Anodenspannungsänderung ist damit proportional der Überlappungszeit und

linear im Impulsabstand. Nach ca. 300facher Verstärkung gelangt der Anodenimpuls der E 91 H in den 20-Kanal-Analysator. Dieser registriert also nun direkt das Flugzeitspektrum der an den Deuteronen gestreuten Neutronen.

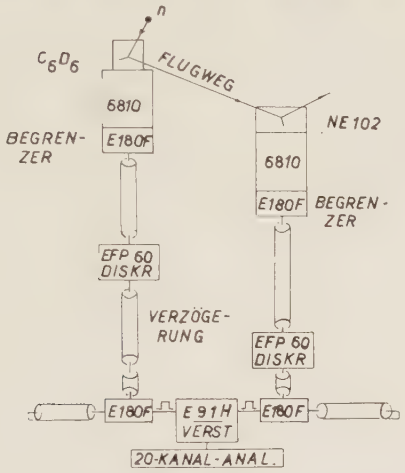


Fig. 1

Apparatur zur Messung von Flugzeitspektren der an den Deuteronen gestreuten Neutronen.

Wir zeigen nachfolgend einige Charakteristiken der Apparatur. Zunächst sprechen die Diskriminatoren mit verschiedener Verspätung auf Eingangsimpulse verschiedener Höhe an. Die Schwelle ist auf 2 Volt eingestellt. Normalimpulse von 3,8 V erfahren eine Verspätung von weniger als 10^{-9} s (Fig. 2). Zur Prüfung der ganzen elektronischen Apparatur

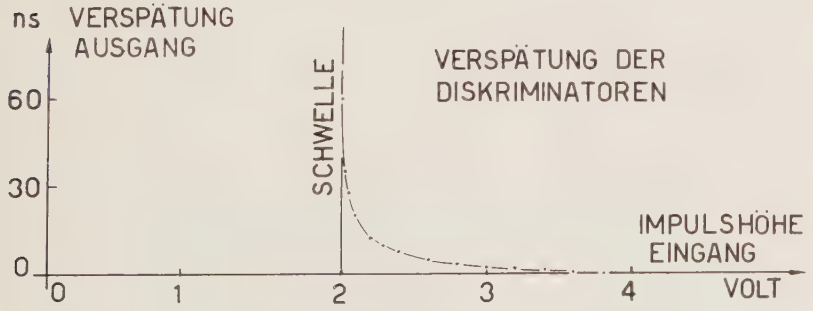


Fig. 2

Verspätung der Ausgangsimpulse der EFP-60-Diskriminatoren in Funktion der Eingangsimpulshöhe gemessen mit künstlichen Impulsen eines Quecksilberschalters, deren Anstiegszeit vernachlässigbar ist. 1 ns = 10^{-9} s.

haben wir vorerst an Stelle von Neutronen Paare gleichzeitig emittierter γ-Quanten von Co^{60} verwendet (Fig. 3). Durch Einschalten von Verzögerungskabeln in einen der Zählkanäle ist die Linearität der Ausgangs-

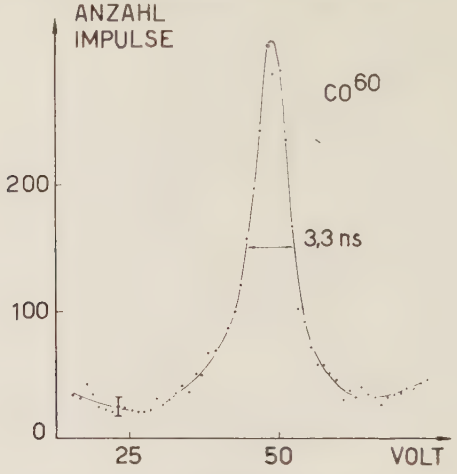


Fig. 3

Zeitspektrum gleichzeitiger Impulse, ausgelöst durch γ-Quantenpaare von Co^{60}.

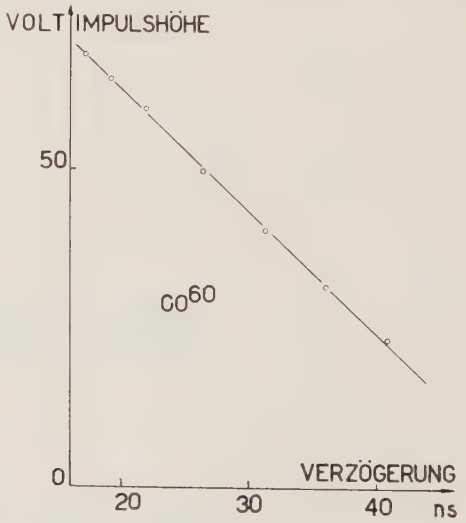


Fig. 4

Impulshöhe am Ausgang des Zeit-Pulshöhenwandlers in Funktion der Verzögerung in einem der Messkanäle. (Lage der Linie in Fig. 3).

impulshöhe (Lage der Spitze in Fig. 3) in Funktion des Zeitabstandes der Eingangsimpulse nachgewiesen worden (Fig. 4). Figur 5 zeigt die

Beziehung zwischen Ausgangsimpulshöhe und Flugzeit von Neutronen verschiedener Geschwindigkeit zwischen den Zählern.

Für die Messung der Polarisation haben wir zunächst einen Flugweg von 22 cm genommen und damit nachgewiesen, dass keine unerwünschten Neutronen im Zeitspektrum vorkommen. Danach ist der Abstand der Zähler gleich 9 cm gewählt worden.

Wir danken Herrn W. Beusch für Diskussionen bezüglich des elektronischen Teiles.

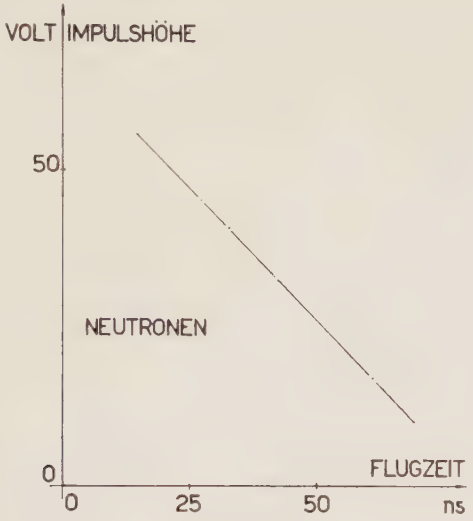


Fig. 5

Impulshöhe am Ausgang des Zeit-Pulshöhenwandlers in Funktion der Neutronenflugzeit zwischen den Zählern.

Literatur

[1]) M. Brüllmann, H.-J. Gerber, D. Meier, Helv. Phys. Acta *31*, 318 (1958).
[2]) I. A. D. Lewis and F. H. Wells, Millimicrosecond Pulse Techniques, Pergamon Press, London 1954.

Interaction de neutrons de 300 MeV avec Cu, Ag et Pt

par Cl. Bovet, E. Jeannet, J. Rossel et E. Vaucher
(Institut de Physique de l'Université de Neuchâtel)

Poursuivant nos recherches sur l'interaction des nucléons de haute énergie avec les noyaux lourds[1])[2]), nous avons étudié les étoiles produites par des neutrons de 300 MeV au moyen de la méthode des émulsions en sandwich.

Les trois sandwiches (feuilles de 15 μ de Cu, 16,5 μ de Ag et 11 μ de Pt, serrées entre 2 émulsions Ilford G5 de 320 μ d'épaisseur, sans support) ont été exposés perpendiculairement au même flux de neutrons de 300 MeV du synchrocyclotron du Carnegie Institute of Technology de Pittsburgh (U.S.A.). Par rapport aux précédentes, la présente investigation a été réalisée dans des conditions présentant les avantages suivants: nature et spectre des particules incidentes connus, flux focalisé et dirigé, gain appréciable de la probabilité d'enregistrement des traces (feuilles métalliques plus minces, émulsions plus épaisses et contact meilleur entre l'émulsion et le métal), possibilité d'utilisation de plaques nucléaires plus sensibles (à cause de l'absence de traces de rayonnement cosmique). Les mêmes méthodes de reconstruction géométrique des étoiles, de correction pour tenir compte des phénomènes non-enregistrés et de discrimination entre traces grises et traces noires ont été utilisées.

Le phénomène étudié est comparé généralement à deux modèles théoriques simples:

1° Un processus d'interactions directes entre les nucléons du noyau et le nucléon incident qui engendre une cascade intranucléaire. Certains des nucléons de cascade peuvent s'échapper du volume nucléaire donnant lieu à une émission fortement anisotrope. Ce premier processus a lieu dans un temps très court[3]) ($\sim 10^{-22}$ s).

2° Un modèle statistique (évaporation nucléaire) qui envisage que le résidu d'excitation consécutif à la cascade est réparti entre tous les nucléons. Sur la base d'un modèle thermodynamique du noyau (considéré comme un gaz de Fermi), on calcule la probabilité d'émission d'une particule de type donné. Cette émission est isotrope dans le système du

Tableau I

	Cu	Ag	Pt
a (traces noires)	1,45	1,73	2,58
a (traces grises et noires) . . .	1,48	1,80	2,73
a^*	1,37	1,21	1,11
$\bar{\nu}$	3,5	2,8	2,5
$\sigma \cdot 10^{19}$	4,2	3,6	4,1
$\sigma/A^{2/3} \cdot 10^{20}$	2,6	1,6	1,2

Note: a^*: anisotropie dans le système du laboratoire d'une distribution isotrope dans le système du centre de masse, due au mouvement de recul du noyau émetteur. a^* est calculé dans l'hypothèse d'une transmission totale d'impulsion; cette valeur est donc une limite supérieure.

centre de masse (le calcul ne faisant pas intervenir la direction du nucléon incident) et a lieu dans un temps beaucoup plus long que le premier processus[4]) (constante de temps de l'ordre de 10^{-20} à 10^{-18} s).

Les grandeurs suivantes ont été déterminées:

1° La distribution angulaire des traces (fig. 1, 2 et 3); l'histogramme en pointillé représente la distribution des traces noires seulement; la courbe représente une distribution isotrope de même norme que l'histogramme détecté. Les rapports, a, des nombres de traces émises vers l'avant et vers l'arrière sont consignés dans le tableau I.

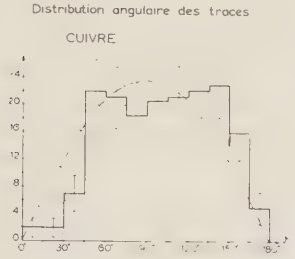


Fig. 1

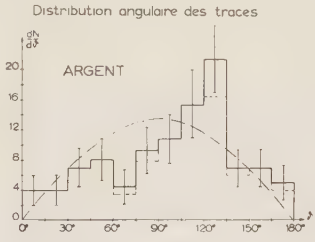


Fig. 2

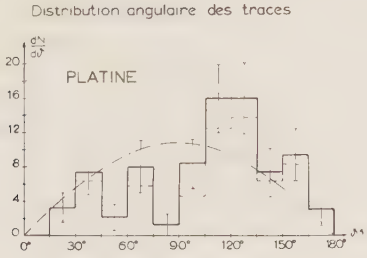


Fig. 3

2° Le nombre moyen $\bar{\nu}$ de branches par étoile (étoiles de deux branches et plus).

3° La section efficace relative de production d'étoiles. Les trois feuilles métalliques ont reçu le même flux (inconnu en valeur absolue). Nous avons reporté dans le tableau I le nombre σ d'étoiles par atome et le rapport $\sigma/A^{2/3}$.

Conclusions

1° Expérimentalement on ne peut pas séparer complètement les traces d'évaporation de celles de cascade; la forte anisotropie observée dans les distributions angulaires des traces noires révèle que le modèle d'évaporation n'est pas suffisant à lui seul. Il faut admettre que même pour les traces noires on a une contamination par les traces de cascade. Dans la

réalité, il doit se faire un passage continu de la cascade à l'évaporation et certaines particules d'énergie réduite sont probablement émises anisotropiquement durant cette période transitoire par un processus d'échauffement local et anisotrope du noyau, avant que l'énergie d'excitation ne soit répartie uniformément et que s'établisse un processus d'évaporation pure.

2° La valeur moyenne $\bar{\nu}$ du nombre de branches par étoile diminue quand A augmente. Cette décroissance s'explique dans le modèle de l'évaporation par une élévation de la barrière de Coulomb et une diminution de la température nucléaire T ($V_{exc} - K_1 A T^2$), V_{exc} croissant plus lentement que A [5]). Dans le modèle de la cascade, pour une énergie incidente comme la nôtre, on prévoit aussi une diminution de $\bar{\nu}$ lorsque A augmente [5]).

3° La variation de la section efficace va dans le sens d'une augmentation de la transparence nucléaire pour des valeurs croissantes de A, comme nous l'avions déjà remarqué [2]).

Nous tenons à remercier ici le Dr Siegel de Pittsburgh qui a gracieusement irradié nos sandwiches, le Dr Winzeler de Berne qui a développé nos émulsions ainsi que Madame Desponds pour son travail consciencieux d'exploration et de reconstruction.

Ce travail a bénéficié d'une aide matérielle de la Commission Suisse de l'Energie Atomique.

Bibliographie

[1]) Cl. Zangger et J. Rossel, Helv. Phys. Acta *29*, 507 (1956).
[2]) E. Jeannet, J. Rossel et E. Vaucher, Helv. Phys. Acta *30*, 484 (1957).
[3]) M. L. Goldberger, Phys. Rev. *74*, 1269 (1948).
[4]) W. Heisenberg, Kosmische Strahlung, 2e édition 1953 (Springer-Verlag), p. 203.
[5]) N. Metropolis, R. Bivins, M. Storm, A. Turkevich, J. M. Miller et G. Friedlander, Phys. Rev. *110*, 185 (1958).

Die Anzahl der mit Hilfe von $2l$ Dirac'schen Spinoren zu bildenden Invarianten

von **M. Fierz,** Basel

(1.VI.1958)

Zusammenfassung. Es wird elementar bewiesen, dass sich mit Hilfe von 4 Diracschen Spinoren 10 Invarianten (Skalare und Pseudoskalare) bilden lassen. Ferner wird gezeigt, dass die Anzahl der Invarianten, die aus $2\,l$ Spinoren gebildet werden können,

$$N_l = \frac{(2l)!\; 2^{l+1} \cdot 1 \cdot 3 \cdot 5 \ldots (2l+1)}{l!\,(l+1)!\,(l+2)!}$$

beträgt.

W. Pauli[1]) hat bewiesen, dass mit Hilfe von vier Diracschen Spinoren genau fünf linear unabhängige Skalare gebildet werden können. Sein Beweis stützt sich auf die Darstellungstheorie des durch die Diracschen Matrizen γ_ν erzeugten Matrix-Ringes.

Ich möchte hier zeigen, wie man dasselbe elementar, mittelst des van der Waerdenschen Spinorkalküls leisten kann. Ferner werden wir die Anzahl der Invarianten bestimmen, die aus $2\,l$ verschiedenen Diracschen Spinoren gebildet werden können.

Der van der Waerdensche Kalkül scheint mir in Theorien, die nicht spiegelvariant sind, natürlich zu sein, weil in ihm die Spiegelungen explizit dargestellt sind. Er ist darum, in wenig veränderter Gestalt, erneut in Gebrauch gekommen[2]). Man nimmt in diesem Kalkül an, $\gamma_5 = \gamma_1\gamma_2\gamma_3\gamma_4$ sei diagonal. Ist ψ ein Diracscher, vierkomponentiger Spinor, so sind jetzt

$$u = \frac{1}{2}(1 + \gamma_5)\,\psi \quad ; \quad v = \frac{1}{2}(1 - \gamma_5)\,\psi$$

zwei zweikomponentige Grössen, deren Komponenten mit

$$u_\alpha,\ v_{\dot\beta}\ ;\ \alpha, \dot\beta = 1, 2$$

bezeichnet werden. Bei eigentlichen Lorentztransformationen werden die Komponenten von u und v je unter sich unimodular transformiert. Dabei transformiert sich v wie u^*.

Bei Raumspiegelungen (P) wird u mit v vertauscht. Die Ladungskonjugation (C) wird durch die Abbildung

$$u \to v^*, \; v \to u^*$$

dargestellt. Darum lautet die Reellitätsbedingung der Majorana-Theorie

$$u^* = v.$$

Die vier Komponenten von $u \times v$ entsprechen denjenigen eines Vierervektors. Die Produkte $u_\alpha^{(1)} u_{\dot\beta}^{(2)}$, wo $u^{(1)}$ und $u^{(2)}$ verschiedene Spinoren sind, können in einen symmetrischen und einen schiefen Teil gespalten werden. Es ist

$$u_1^{(1)} u_2^{(2)} - u_2^{(1)} u_1^{(2)} \equiv u_\alpha^{(1)} u^{(2)\alpha}$$

eine Invariante, während die drei Grössen

$$u_\alpha^{(1)} u_{\dot\beta}^{(2)} + u_{\dot\beta}^{(1)} u_\alpha^{(2)} \equiv (u^{(1)} u^{(2)})_{\alpha\dot\beta}$$

den Komponenten eines Flächentensors entsprechen.

Aus einem Produkt von vier Spinoren kann man nur dann eine Invariante bilden, wenn die Anzahl der darin enthaltenen $u^{(k)}$ gerade ist. Es gibt acht derartige Produkte, die paarweise durch Spiegelung, das heisst durch Vertauschen der $u^{(k)}$ mit den $v^{(k)}$ auseinander hervorgehen. Darum genügt es, die eine Hälfte zu betrachten:

$$a = u^{(1)} u^{(2)} u^{(3)} u^{(4)} \;, \quad c = u^{(1)} v^{(2)} u^{(3)} v^{(4)}$$

$$b = u^{(1)} u^{(2)} v^{(3)} v^{(4)} \;, \quad d = u^{(1)} v^{(2)} v^{(3)} u^{(4)}$$

Aus a kann man zwei Invarianten, aus den übrigen je eine bilden:

$$A_1 = u_\alpha^{(1)} u^{(2)\alpha} \cdot u_\beta^{(3)} u^{(4)\beta} \qquad C = u_\alpha^{(1)} u^{(3)\alpha} \cdot v_{\dot\beta}^{(2)} v^{(4)\dot\beta}$$

$$A_2 = (u^{(1)} u^{(2)})_{\alpha\beta} \cdot (u^{(3)} u^{(4)})^{\alpha\beta} \qquad D = u_\alpha^{(1)} u^{(4)\alpha} \cdot v_{\dot\beta}^{(2)} v^{(3)\dot\beta}$$

$$B = u_\alpha^{(1)} u^{(2)\alpha} \cdot v_{\dot\beta}^{(3)} v^{(4)\dot\beta}$$

Es gibt somit 10 Invarianten: fünf Skalare $X + \dot X$ und fünf Pseudoskalare $X - \dot X$, wobei $\dot X$ das gespiegelte von X bedeutet ($X = A, B, C, D$). Die $\psi^{(k)} = \begin{pmatrix} u^{(k)} \\ v^{(k)} \end{pmatrix}$ sind quantisierte Felder. Wenn daher $\psi^{(1)} = \psi^{(2)}$ gesetzt wird, so gilt wegen $\{\psi, \psi\} = 0$:

$$u_\alpha^{(k)} u_\beta^{(k)} = - u_\beta^{(k)} u_\alpha^{(k)}.$$

Darum verschwindet in diesem Falle A_2, das heisst die Tensorkopplung. D ist das gespiegelte von C. Also gibt es hier noch sechs unabhängige Invarianten: drei Skalare und drei Pseudoskalare. Nimmt man an, das

Neutrino sei ein Majorana-Teilchen, so ist die Kopplung, welche den Zerfall des μ-Mesons beschreibt, von dieser Art. Setzt man überdies noch $\psi^{(3)} = \psi^{(4)}$, so wird $C = D$ und man hat fünf Invarianten: Drei Skalare und zwei Pseudoskalare.

Wir fragen weiter, wie viele Invarianten aus $2\,l$ verschiedenen, Diracschen Spinoren $\binom{u}{v}$ gebildet werden können. Hier haben wir die $\binom{2\,l}{2\,k}$ Produkte zu betrachten, die $2\,k$ Faktoren u, $2(l-k)$ Faktoren v enthalten. Die erste Aufgabe ist nun, die Anzahl von Invarianten zu bestimmen, die in einem Produkt von $n = 2\,m$ verschiedenen Spinoren $u_\alpha^{(\nu)}$, ($\alpha = 1, 2$; $\nu = 1 \ldots 2\,m$) enthalten sind.

Dies läuft auf die Reduktion eines Spinors mit n Indices: $u_{\alpha_1 \ldots \alpha_n}$, ($\alpha_k = 1, 2$), in irreduzible Bestandteile hinaus. Die irreduziblen Darstellungen ϑ_s der unimodularen Gruppe, die man so erhält, gehören zu $S = n/2 - k$; $k = 0, 1, 2 \ldots$; und wir fragen, wie oft kommt ein jedes S vor. Diese Anzahlen seine $C_{n,k}$.

Aus $$\vartheta_{1/2} \times \vartheta_s = \vartheta_{s-1/2} + \vartheta_{s+1/2};\ \vartheta_{1/2} \times \vartheta_0 = \vartheta_{1/2}$$

erkennt man, dass die $C_{n,k}$ durch die Zahlen im «halben Pascalschen Dreieck» bestimmt sind*):

				1				
		1				1		
	0		2				1	
		2		3				1
0		5		4			1	
	5		9			5		1

usw.

Also gilt $$C_{nk} = \binom{n-1}{k} - \binom{n-1}{k-2} = \frac{n!\,(n+1-2\,k)}{k!\,(n+1-k)!}$$

Ist $n = 2\,m$, $k = m$, so erhält man die Anzahl der Skalare:

$$C_{2m,m} = \frac{1}{m}\binom{2\,m}{m+1}.$$

$2\,l$ verschiedene Diracsche Spinoren $\binom{u}{v}$ ergeben darum

$$N_l = \sum_{k=0}^{l} \binom{2\,l}{2\,k} \frac{1}{k} \binom{2\,k}{k+1} \frac{1}{l-k} \binom{2\,(l-k)}{l-k+1}$$

Invarianten. Ich schreibe

$$N_l = \frac{(2\,l)!}{(l+1)!^2} \sum_{k,m} \delta_{km} \binom{l+1}{k} \binom{l+1}{m+1}.$$

*) Vgl. A. Speiser, Theorie der Gruppen endlicher Ordnung, 3. Auflage (1937), S. 232.

Benützt man nun

$$\delta_{km} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{i(k-m)\varphi} \, d\varphi$$

so kann man die Summe vor der Integration ausführen und erhält

$$N_l = \frac{(2l)!}{(2l+1)!^2} \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \cos\varphi \, (2\cos\varphi/2)^{2(l+1)} \, d\varphi$$

$$= \frac{(2l)! \cdot 2^{l+1} \cdot 1, 3, 5 \ldots (2l+1)}{l! \, (l+1)! \, (l+2)!} .$$

Also ist $N_1 = 2,\ N_2 = 10,\ N_3 = 70,\ N_4 = 588, \ldots .$

Basel, Seminar für theoretische Physik der Universität

Literatur

[1]) W. Pauli, Zeeman-Verhandelingen (Haag 1935), S. 31.
[2]) R. P. Feynmann und M. Gell-Mann, Phys. Rev. *109*, 193 (1958).

Untersuchungen von (γ,pn)- und (γ,d)-Reaktionen mit Gammaenergien bis zu 32 MeV

von **A. Hofmann** und **P. Stoll** (ETH., Zürich)

(9. V. 1958)

Summary. Photon induced two-particle emission has been investigated with a 32 Mev betatron. The yields of the following (γ, pn)- and (γ, d)-reactions have been determined: $Ca^{40}(\gamma, pn)$ K^{38}, $Zn^{64}(\gamma, pn)$ Cu^{62}, $Zn^{66}(\gamma, pn)$ Cu^{64}, $Se^{80}(\gamma, pn)$ As^{78}, $Mo^{92}(\gamma, pn)$ Nb^{90}, $Sb^{123}(\gamma, pn)$ Sn^{121}. The cross section-vs. photon energy relationship was measured for the reactions $Ca^{40}(\gamma, pn)$ K^{38} and $Zn^{66}(\gamma, pn)$ Cu^{64}. The integrated cross section of the $Zn^{66}(\gamma, nn)$ Zn^{64} process is about double that of the $(\gamma, pn) + (\gamma, d)$-reaction on Zn^{66}. $(\bar{\sigma}_{Zn^{66}(\gamma, pn) + Zn^{66}(\gamma, d)} = 0{,}031 \pm 0{,}008$ MeV barn). The value for the $Zn^{66}(\gamma, nn)$-reaction is calculated from statistical theory to be $\bar{\sigma}_{Zn^{66}(\gamma, nn)} = 0{,}088$ MeV barn.

We have plotted as a function of the nuclear charge the yield of $(\gamma, pn) + (\gamma, d)$-reactions together with the yield of (γ, α)- and (γ, p)-reactions. It is evident, that the $(\gamma, d + \gamma, pn)$-yields have the seeme shape as the (γ, p)-reactions.

1. Einleitung

Die Ausmessung von Photoreaktionen, bei denen zwei oder mehrere Teilchen emittiert werden, interessiert aus verschiedenen Gründen. Vorerst ist zu bemerken, dass Messungen der Energieabhängigkeit für die (γ, pn)- und (γ, d)-Reaktionen sehr spärlich vorhanden sind. Während Berman und Brown[1]) die Anregungskurve der $Cu^{63}(\gamma, 2n)Cu^{61}$-Reaktion mit hoher Präzision bis zu 30 MeV untersucht haben, sind die entsprechenden Daten für die (γ, pn)- und (γ, d)-Prozesse nicht widerspruchsfrei. Die letzten Messungen von Sagane[2]), Edwards und MacMillan[3]) mit Hilfe eines 70-MeV-Synchrotrons sind teilweise ohne Regulierung der Grenzenergie durchgeführt worden. Auffallend sind die viel zu grossen (γ, p)-Querschnitte für einige gutbekannte Reaktionen.

Auch die (γ, pn)-, (γ, d)- und $(\gamma, 2n)$-Reaktionen werden durch den Gegensatz direkte Wechselwirkung und Compoundkernbildung beherrscht. Bei der direkten Wechselwirkung tritt das Photon oder ein

einfallendes Teilchen in Wechselwirkung mit einem oder nur wenigen Nukleonen. Die Zeit bis zur Reemission ist sehr kurz. Die Compoundkernbildung ist gekennzeichnet durch eine Aufteilung der einfallenden Energie auf sämtliche Partner. Dementsprechend ist die mittlere Verweilzeit des Zustandes lang ($10^{-16}s$). Auch im optischen Modell kennt man diesen Gegensatz (shape elastic → compound elastic). Grosse Wirkungsquerschnitte bei (p, pn)-Reaktionen müssen oft durch zusätzliche direkte Wechselwirkung erklärt werden, die teilweise durch Winkelverteilungsmessungen erhärtet wurden. Messungen von COHEN und Mitarbeitern[4]) ergaben eindeutig, dass die (p, pn)-Querschnitte unter Umständen erheblich grösser als die $(p, 2n)$-Querschnitte sein können. (Beispiel: Targetkern Cu^{63}, $\sigma_{\max(p,pn)} = 590\ mb$, $\sigma_{\max(p,2n)} = 100\ mb$).

Die grossen experimentellen Werte der (p, pn)- bzw. (p, np)-Reaktionen lassen sich mit der statistischen Theorie nicht erklären, das bedeutet, dass man mit der grossen Niveaudichte der *uu*-Restkerne allein nicht auskommt. Eine noch offene Frage ist der Anteil der unelastisch gestreuten Protonen, Prozesse, die sich durch Aktivitätsmessungen von den «wahren» (p, pn)-Reaktionen nicht trennen lassen (dasselbe gilt auch für die (p, d)-Prozesse). Es bleibt noch zu bemerken, dass der (p, pn)-Querschnitt bei Nb^{93} normal herauskommt.

In dieser Arbeit wird versucht, durch einen Vergleich der Wirkungsquerschnitte folgender Reaktionen am gleichen Targetkern den Anteil der verschiedenen gegensätzlichen Mechanismen abzuschätzen.

$$\frac{\sigma(p, pn)}{\sigma(p, 2n)}\ ;\quad \frac{\sigma(\gamma, pn)}{\sigma(\gamma, 2n)}\ .$$

Bei reiner Compoundkernbildung und dem Teilchenzerfall nach der statistischen Theorie würde man ein vollständig analoges Verhalten erwarten. Die Experimente an den Kernen Zn^{64} und Zn^{66} zeigen aber, dass das nicht der Fall ist. In diesem Zusammenhang muss noch erwähnt werden, dass gerade der $(\gamma, 2n)$-Prozess an mittelschweren und schweren Kernen als Testfall für die Gültigkeit der Evaporationstheorie herangezogen wird. WILKINSON und Mitarbeiter[5]) versuchen mit dieser Annahme sogar aus dem Wirkungsquerschnittsverhältnis $\gamma, n/\gamma, 2n$ für den gleichen Targetkern den Anteil der Direktprozesse bei der (γ, n)-Reaktion abzuschätzen. Die Resultate sind allerdings sehr zweifelhaft (vgl. [6])). Wegen experimenteller Schwierigkeiten (es kommen praktisch nur Kernphotoplatten in Frage) sind die (γ, d)-Querschnitte noch nicht eindeutig festgelegt. Die statistische Theorie versagt in diesem Fall. Mit der in dieser Arbeit angewendeten Messmethode kann leider nur eine summarische Abschätzung des (γ, d)-Querschnittes gegeben werden.

2. Messmethode

a) *Prinzip der Aktivitätsmessung, Monitorreaktionen*

Es wird die Aktivität der entstandenen radioaktiven Endprodukte gemessen. Damit beschränkt sich die Auswahl auf eine bestimmte Anzahl von Elementen, die eine geeignete Halbwertszeit und ein bekanntes Zerfallsschema aufweisen müssen. Die chemische Abtrennung der entstandenen Elemente schützt vor störenden Aktivitäten und gestattet die Herstellung von dünnen Schichten.

Als Strahlungsquelle diente ein 32-MeV-Betatron mit einer variabeln Grenzenergie im Bereiche von 15 bis 32 MeV. Als Monitoren wurden die Kupferreaktionen $Cu^{63}(\gamma, n)\,Cu^{62}$ und $Cu^{65}(\gamma, n)\,Cu^{64}$ benutzt, deren Wirkungsquerschnitte absolut gemessen wurden[3])[7]): $\bar{\sigma}_{(Cu^{62}(\gamma, n)\,Cu^{62}} = 0{,}55 \pm 0{,}003$ MeV barn. Aus dem gemessenen Verhältnis

$$\bar{\sigma}(Cu^{65}) \,/\, \bar{\sigma}(Cu^{63}) \text{ ergibt sich:}$$

$$\bar{\sigma}_{(Cu^{65}(\gamma, n)\,Cu^{64})} = 1 \pm 0{,}1 \text{ MeV barn.}$$

Es hat sich als geeignet erwiesen, die Intensitätsverteilung der Betatronbremsstrahlung in flächennormierten Spektren nach SCHIFF[8]) anzugeben (siehe auch ERDÖS, SCHERRER und STOLL[9])).

$$I(E, E_0) = \frac{f(E, E_0)}{\int_0^{E_0} f(E, E_0)\, dE}.$$

Aus der Aktivitätsmessung wird die Aktivität des Isotops zur Zeit $t = 0$, d. h. am Ende der Bestrahlung und bezogen auf unendlich lange Bestrahlungsdauer, berechnet:

$$A = \frac{\sum_{t_1}^{t_2} n \cdot \lambda}{(e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2})\,(1 - e^{-\lambda t})}.$$

t_1: Zeit bis Zählbeginn, gemessen vom Ende Bestrahlung an.
t_2: Zeit bis Zählende.
t : Bestrahlungsdauer.
λ: Zerfallskonstante.
$\sum_{t_1}^{t_2} n$: Im Zeitintervall $(t_2 - t_1)$ gemessene Stosszahl.

b) *Integrierter Wirkungsquerschnitt*

Der integrierte Wirkungsquerschnitt (I.W.Q.) wird definiert durch:

$$\bar{\sigma} = \int_0^{E_0} \sigma(E)\, dE \quad \text{(MeV barn)}.$$

Damit $\bar{\sigma}$ wirklich eine aufschlussreiche Grösse für die betreffende Reaktion darstellt, soll sie unabhängig von E_0 sein, d. h. $\sigma(E)$ soll für $E > E_0$

klein sein. Für Photoprozesse heisst das, die Riesenresonanz muss in dem Energiebereich zwischen 0 und E_0 voll enthalten sein. Liegen die beiden Riesenresonanzen ungefähr an der gleichen Stelle und ist zudem dort das Bremsstrahlspektrum ungefähr konstant, dann gilt:

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_2} = \frac{Y_1(E_0)}{Y_2(E_0)} .$$

Dabei bedeuten Y_1 und Y_2 die korrigierten Ausbeuten (korrigiert in bezug auf Zerfallsschema, Rückstreuung, Absorption, Raumwinkel und Vorkommen). Ist die oben genannte Bedingung nicht erfüllt, liegen also die Riesenresonanzen nicht an der gleichen Stelle, so muss noch eine zusätzliche Korrektur angebracht werden. Dabei wird vorausgesetzt, dass die Anregungskurve bereits im relativen Maßstab bekannt ist. Mit Hilfe des Betatronspektrums wird die Grösse $I(E_{max}, E)$ für die zu untersuchende Reaktion 1 und die Monitorreaktion 2 bestimmt. E_{max} bedeutet dabei den Energiewert für den maximalen Querschnitt der Reaktion und kann aus der relativ bekannten Anregungskurve bestimmt werden. Es gilt dann:

$$\frac{\bar{\sigma}_1}{\bar{\sigma}_2} = \frac{Y_1(E_0)}{Y_2(E_0)} \cdot \frac{I_2(E_{max}, E_0)}{I_1(E_{max}, E_0)} .$$

Oder da ja $\bar{\sigma}_1$ bekannt ist:

$$\bar{\sigma}_1 = \bar{\sigma}_2 \cdot \frac{Y_1(E_0)}{Y_2(E_0)} \cdot \frac{I_2(E_{max}, E_0)}{I_1(E_{max}, E_0)} .$$

Um die differentiellen W.Q. zu bestimmen, wurde die Photon-Differenzenmethode[9]) angewendet. Die daraus erhaltenen Anregungskurven sind in Abb. 1 dargestellt. Durch die im Betatron entstehenden Neutronen treten auch störende (n, p)-Prozesse auf, deren Berücksichtigung bei der Besprechung der einzelnen Reaktionen diskutiert wird.

3. Messungen

a) Zn^{66} (γ, pn) Cu^{64}

Vorkommen von Zn^{66}: $\varepsilon = 27{,}81\%$. Zn^{66} (γ, pn) Cu^{64}: $Q = -18{,}65$ MeV Zn^{66} (γ, d) Cu^{64}: $Q = -16{,}42$ MeV.

Als Ausgangssubstanz wurde 2 g chemisch reines Zn in Pulverform gewählt. Zwei Cu-Folien wurden gleichzeitig mit der gleichen Geometrie bestrahlt. Das durch die Reaktion entstandene Kupfer konnte praktisch trägerfrei extrahiert werden. Durch eine wiederholte Trennung wurde die

*) Über die chemischen Methoden wird an anderer Stelle berichtet werden.

chemische Ausbeute auf 95 $\pm$ 5% bestimmt. Als Neutronen-Konkurrenzreaktion kommt der Prozess Zn^{64} (n, p) Cu^{64} in Frage (Zn^{64}: $\varepsilon = 48{,}89\%$, $Q = -0{,}7$ MeV). Der Neutronenfluss des verwendeten 32-MeV-Betatrons kann in guter Näherung mit demjenigen einer Ra-Be-Quelle von 900 mC verglichen werden. Probebestrahlungen mit einer 300-mC-Ra-Be-Quelle zeigten aber eindeutig, dass der Anteil der Störreaktion weniger als 10% beträgt. Der Restkern Cu^{64} hat eine Halbwertszeit von $T = 12{,}8$ h und ein komplexes Zerfallsspektrum:

$$42\%\ \text{K-Einfang},\ 39\%\ \beta^+\ (0{,}65\ \text{MeV}),\ 19\%\ \beta^-\ (0{,}57\ \text{MeV}).$$

Da die K-Einfänge nicht registriert werden, muss die gemessene Ausbeute noch mit dem Faktor 1,72 korrigiert werden. Im übrigen wirken sich in diesem Spezialfall diese Korrekturen nicht aus, da die Monitorreaktion ebenfalls auf den Restkern Cu^{64} führt. Da in diesem Fall Reaktion und Monitorreaktion auf den gleichen Restkern führen, ist diese Messung sehr genau. Das Ergebnis:

$$\frac{Y_{(Zn^{66}(\gamma, pn)\,Cu^{64}}}{Y_{(Cu^{65}(\gamma, n)\,Cu^{64}}} = 0{,}031 \pm 0{,}006\ ;$$

$$\bar{\sigma}_{(Zn^{66}(\gamma, pn)\,Cu^{64})} = 0{,}031 \pm 0{,}008\ \text{MeV barn}.$$

Die Anregungskurve wurde mit der Photon-Differenzenmethode berechnet und auf 0,031 MeV barn normiert. Sie ist in Fig. 1 aufgetragen ($\sigma_{max} = 7{,}2$ mb bei $E_\gamma = 28 \pm 1$ MeV, $\Gamma = 4$ MeV).

Als Vergleich wurde der (γ, p)-Prozess an Zn^{68} mitgemessen:

$$\bar{\sigma}_{(Zn^{68}(\gamma, p)\,Cu^{67})} = 0{,}075 \pm 0{,}01\ \text{MeV barn}$$

($\sigma_{max} = 11{,}4$ mb bei $E_\gamma = 22{,}7 \pm 1$ MeV, $\Gamma = 6$ MeV, $Q = -10{,}01$ MeV).

Um unabhängig von der chemischen Trennmethode eine Kontrolle zu haben, wurde eine Zn-Folie bestrahlt und ohne chemische Trennung gemessen. Es traten die folgenden Aktivitäten auf: Zn^{64} $(\gamma, 2n)$ Zn^{62} $T = 9{,}3$ h, Zn^{66} (γ, pn) Cu^{64} $T = 12{,}8$ h, Zn^{68} (γ, p) Cu^{67} $T = 58{,}6$ h. Die beiden kürzeren Aktivitäten liessen sich von der längeren trennen, und es konnte das folgende Verhältnis berechnet werden:

$$\frac{\bar{\sigma}_{(Zn^{68}(\gamma, p)\,Cu^{67}}}{\bar{\sigma}_{(Zn^{66}(\gamma, pn)\,Cu^{64} + Zn^{64}(\gamma, 2n)\,Zn^{62} + Zn^{66}(\gamma, d)\,Cu^{64})}} = 1{,}2 \pm 0{,}7.$$

Innerhalb der Genauigkeit darf behauptet werden, dass die Summe der Wirkungsquerschnitte der $(\gamma, pn) + (\gamma, d) + (\gamma, 2n)$-Reaktionen ungefähr gleich gross ist wie der Wirkungsquerschnitt der (γ, p)-Reaktion.

b) $Zn^{64}(\gamma, pn)\,Cu^{62}$

$Zn^{64}(\gamma, pn)\,Cu^{62}$ $Q = -18{,}35$ MeV, $Zn^{64}(\gamma, d)\,Cu^{62}$ $Q = -16{,}12$ MeV. Wegen der kurzen Halbwertszeit von nur 10 m konnte keine chemische Trennung durchgeführt werden. Abgezogen wurden folgende Aktivitäten: $Zn^{64}(\gamma, 2n)\,Zn^{62}$ (9,3 h), $Zn^{64}(\gamma, n)\,Zn^{63}$ (38,3 m), $Zn^{66}(\gamma, pn)\,Cu^{64}$ (12,8 h). Als Monitor diente die $Cu^{63}(\gamma, n)\,Cu^{62}$-Reaktion, die wieder auf den gleichen Endkern wie das Präparat führt. Zerfallsschema, Rückstreuung usw. spielen somit keine Rolle, was die Genauigkeit der Messung

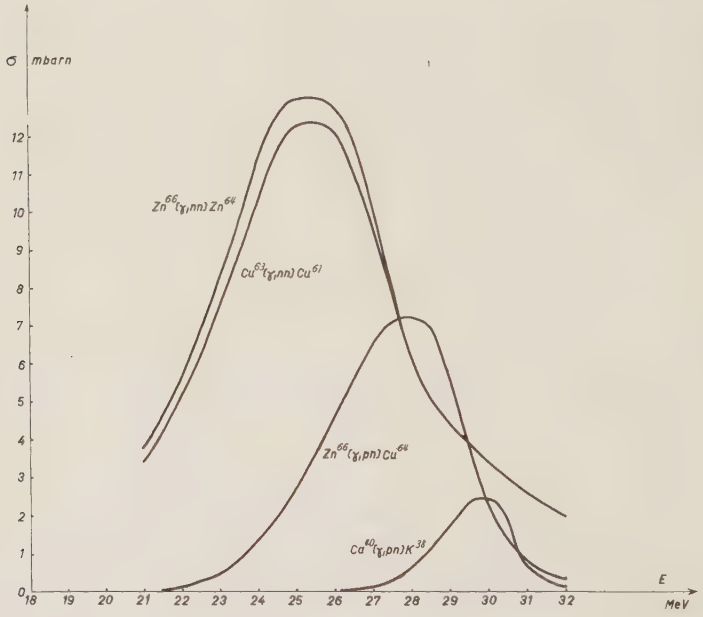


Fig. 1

Gemessene Anregungskurven folgender Reaktionen: $Ca^{40}(\gamma, pn)\,K^{38}$, $Zn^{66}(\gamma, pn)\,Cu^{64}$. Die Anregungskurve der $Zn^{66}(\gamma, nn)\,Zn^{64}$-Reaktion wurde mit Hilfe der statistischen Theorie berechnet.
Der Anteil der (γ, d)-Reaktion ist in den entsprechenden (γ, pn)-Anregungskurven enthalten.

erhöht. Die Anregungskurve wurde nicht aufgenommen, aber es ist naheliegend, anzunehmen, dass sich E_{max} auch bei etwa 28 MeV befindet wie bei der Reaktion an Zn^{66}. Das Resultat: $\bar{\sigma}\,Zn^{64}(\gamma, pn)\,Cu^{62} = 0{,}03 \pm 0{,}01$ MeV barn.

c) *Zusammenstellung sämtlicher Messungen*

Die integrierten Wirkungsquerschnitte der (γ, pn)-Reaktionen konnten erstmals auch an anderen Elementen bestimmt werden. Die Messmethode ist dieselbe wie bei den beschriebenen Beispielen.

Tabelle I

Reaktion	Q-Wert MeV	I.W.Q. $\bar{\sigma}$ MeV barn	σ_{max} mb	E_{max} MeV	Γ MeV
$Ca^{40}(\gamma, pn)\ K^{38}$	$-24{,}3$	0,005	2,4	30 ± 1	2,1
$Zn^{64}(\gamma, pn)\ Cu^{62}$	$-18{,}36$	0,03			
$Zn^{66}(\gamma, pn)\ Cu^{64}$	$-18{,}65$	0,031	7,2	28 ± 1	4
$Zn^{68}(\gamma, p)\ Cu^{67}$	$-10{,}01$	0,19	11,4	$22{,}7 \pm 1$	6
$Se^{80}(\gamma, pn)\ As^{78}$	$-20{,}43$	0,02			
$Zn^{64}(\gamma, 2n)\ Zn^{62}$	$-20{,}82$	0,08			
$Mo^{92}(\gamma, pn)\ Nb^{90}$	$-19{,}5$	0,02			
$Sb^{123}(\gamma, pn)\ Sn^{121}$	$-18{,}2$	0,0006			

4. Diskussion der Resultate

Die Messung der Aktivität gestattet nicht, zwischen den (γ, pn)-, (γ, np)- und (γ, d)-Reaktionen zu unterscheiden. Der Schwellenwert der (γ, pn)- und der (γ, np)-Reaktion liegt gegenüber demjenigen der (γ, d)-Reaktion um die Bindungsenergie des Deuterons (2,23 MeV) höher. Eine Unterscheidung ist bei unseren Anregungskurven wegen der schlechten Auflösung nicht möglich. KATZ und PENFOLD[10]) haben am Schwefel für die $(\gamma, pn) + (\gamma, d)$-Reaktion ein $\bar{\sigma}$ von 4,1 MeV mb gemessen, wobei durch Ausmessung der Knicke in der Anregungskurve folgende Aufteilung ermittelt werden konnte: (γ, d)-Reaktion: $\sigma_{max} = 0{,}7$ mb, (γ, pn)-Reaktion: $\sigma_{max} = 1{,}5$ mb. In einer zusammenfassenden Arbeit von FORKMAN[11]) wird gezeigt, dass die statistische Theorie beim (γ, d)-Prozess versagt. Das Verhältnis $Y(\gamma, d)/Y(\gamma, pn)$ schwankt von Element zu Element und beträgt bei Co und Cu $\sim 0{,}2$ ($E_\gamma = 20$ MeV). Für die Emission eines Photo-Deuterons muss ein Spezialmechanismus ausgedacht werden. Einen Vorschlag für einen sog. «Pick-up-Prozess» findet man bei SAWICKI[12]). Den (γ, pn)-Prozess kann man sich so vorstellen, dass das sekundäre Teilchen vom primären Partikel herausgeschlagen wird. Es ist überraschend, dass die wenigen gemessenen (γ, d)-Querschnitte sehr stark streuen. Unsere W.Q., die durch Aktivitätsmessungen bestimmt wurden, umfassen stets den (γ, pn)- und den (γ, d)-Prozess. Es ist für die Diskussion interessant bei einem Kern, z. B. Zn^{66} die beiden

Reaktionen $(\gamma, 2n)$ und (γ, pn) zu vergleichen. Da von der (γ, nn)-Reaktion an Zn^{66} keine Messung der Anregungskurve vorlag, wurde diese nach folgenden Annahmen berechnet:

1. (γ, nn)-Prozesse können mit der statistischen Theorie erfasst werden. Die Richtigkeit dieser Voraussetzung kann an vielen Beispielen erläutert werden.

2. Die Einfangwahrscheinlichkeit für Gammastrahlen wird aus der experimentell gemessenen Anregungskurve der Reaktion Cu^{63} $(\gamma, 2n)$ Cu^{61} entnommen. Es handelt sich hier um eine Umrechnung der Anregungskurve des (γ, nn)-Prozesses an Cu^{63} auf diejenige auf Zn^{66}:

$$\frac{\bar{\sigma}_{(Zn^{66}(\gamma, nn)\, Zn^{64})}}{\bar{\sigma}_{(Cu^{63}(\gamma, nn)\, Cu^{61}}} = \frac{\frac{J_{n\,(Cu^{63})}}{J_{nn\,(Cu^{63})}} + 1}{\frac{J_{n\,(Zn^{66}}}{J_{nn\,(Zn^{66})}} + 1}$$

$$J_n = \int_0^{E\gamma - S_n} \varepsilon\, \sigma_c(\varepsilon)\, \omega(E)\, d\varepsilon \quad [13])$$

$$J_{nn} = \int_0^{E_\gamma - S_n - S_n'} \varepsilon\, \sigma_c(\varepsilon)\, \omega\,(E')\, d\varepsilon$$

σ_c = inverser Einfangsquerschnitt.

$\omega = C\, e^{2\sqrt{a\,E}}$ = Niveaudichte (a und σ_c wird aus der Arbeit von Weisskopf[13]) entnommen).

S_n = Bindungsenergie des 1. Neutrons an den Targetkern.

S_n' = Bindungsenergie des 2. Neutrons an den Zwischenkern.

Zusätzlich wird angenommen, dass die Reaktion in zwei Stufen verläuft und dass der Zwischenkern immer ein Neutron emittiert, wenn er genügend Energie dazu hat. Die Niveaudichte bezieht sich auf die Zwischenkerne Zn^{65} bzw. Cu^{62}. Die errechnete Anregungskurve deckt sich beinahe mit der gemessenen (siehe Fig. 1). Der integrierte Wirkungsquerschnitt beträgt:

$$\bar{\sigma}_{(Zn^{66}(\gamma, nn)\, Zn^{64})} = 86 \text{ MeV barn},$$

wenn nach Berman und Brown[1]) für die (γ, nn)-Reaktion an Cu^{63} 81 MeV barn eingesetzt wird.

Hält man an diesem Zweistufenprozess fest, so muss $\bar{\sigma}_{(\gamma, np)}$ kleiner sein als $\bar{\sigma}_{(\gamma, pn)}$. Die Emission eines Protons aus einem Zwischenkern ist sehr viel unwahrscheinlicher als die eines Neutrons (vgl. [13])). Die Anregungskurve einer (γ, pn)-Reaktion kann mit der statistischen Theorie nicht berechnet werden, da diese erfahrungsgemäss bei (γ, p)-Reaktionen

versagt. Fig. 1 zeigt den Verlauf von Anregungskurven an verschiedenen Kernen. Vergleicht man diese mit Messungen von SAGANE[5]), so sieht man, dass die letzteren eine viel zu grosse Halbwertsbreite ($\Gamma \sim 8$–10 MeV) aufweisen. Der Einfluss der Neutronen beim 70-MeV-Synchrotron wird leider in den Arbeiten[5]) und [6]) nicht diskutiert. Es bleibt noch zu bemerken, dass bei EDWARDS[6]) auch die (γ, p)-Querschnitte zu gross sind. In der Fig. 2 wird die Ausbeute in Reaktionen pro Mol und Röntgen

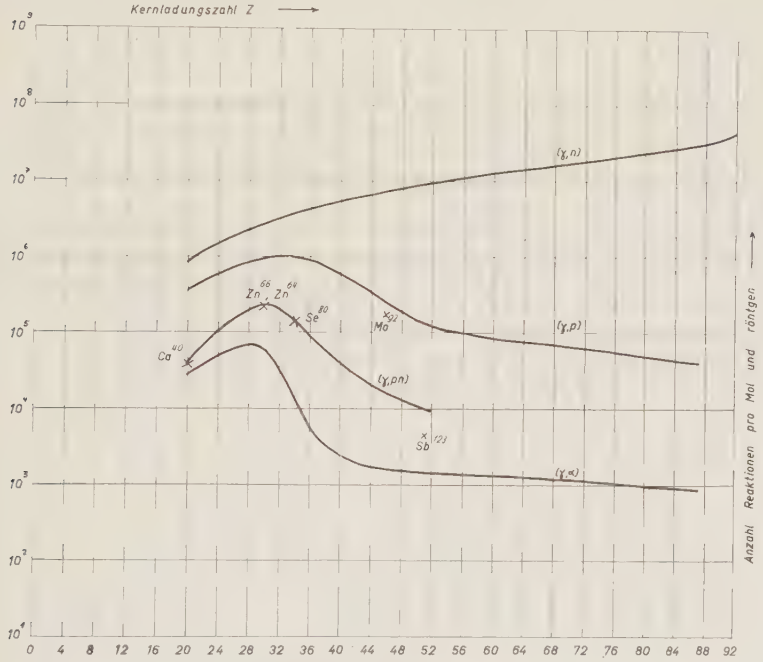


Fig. 2

Verlauf des integrierten Wirkungsquerschnittes in Abhängigkeit von der Kernladungszahl.
Die Kurven für die (γ, n)-, (γ, p)-, (γ, α)-Prozesse werden aus der Arbeit von ERDÖS, SCHERRER und STOLL[9]) entnommen.

als Funktion der Kernladungszahl aufgetragen. Eine Diskussion derselben findet man bei ERDÖS, STOLL und SCHERRER[9]). Es ist auffallend, dass die (γ, p)- und (γ, pn)-Ausbeuten ungefähr gleich verlaufen, so dass mit grosser Wahrscheinlichkeit angenommen werden darf, dass die (γ, pn)-Reaktionen gegenüber den (γ, np)-Prozessen überwiegen. Die in den Anregungskurven gefundenen Maxima stellen wie bei den (γ, α)-Prozessen keine Folge der Riesenresonanz des Photoeinfanges dar.

Zusammenfassung

Die $(\gamma, pn) + (\gamma, d)$-Querschnitte an den mittelschweren Kernen Zn^{66} und Zn^{64} sind kleiner als die entsprechenden (γ, nn)-Querschnitte. Es besteht daher keine Übereinstimmung im relativen Verlauf der entsprechenden Anregungskurven für (p, pn)- und $(p, 2n)$-Reaktionen. Für die Erklärung der Effekte, die bei den (p, pn)- und $(p, 2n)$-Reaktionen beobachtet wurden (vgl. Einleitung), kann daher zusätzlich die unelastische Streuung von Protonen herangezogen werden. Die W.Q. der folgenden Reaktionen konnten erstmalig gemessen werden:

$$Ca^{40}(\gamma, pn)\ K^{38}$$

$$Se^{80}(\gamma, pn)\ As^{78}$$

$$Sb^{123}(\gamma, pn)\ Sn^{121}$$

Der Verlauf der W.Q. der $(\gamma, pn + \gamma, d)$-Reaktionen in Funktion der Kernladungszahl Z zeigt grosse Ähnlichkeit mit demjenigen für (γ, p)-Reaktionen. Die $(\gamma, 2n)$-Querschnitte sind in der Regel wenig grösser als die Summe der $(\gamma, pn + \gamma, np + \gamma, d)$-Reaktionen.

Dem Institutsvorstand, Herrn Prof. Dr. P. Scherrer, möchten wir für seine stete Unterstützung herzlich danken.

Literaturverzeichnis

[1]) A. I. Berman und K. L. Brown, Phys. Rev. *96*, 83 (1954).
[2]) R. Sagane, Phys. Rev. *85*, 926 (1952).
[3]) L. S. Edwards und F. A. MacMillan, Phys. Rev. *87*, 377 (1952).
[4]) B. L. Cohen, E. Newman, R. A. Charpie und T. H. Handley, Phys. Rev. *94*, 620 (1954).
[5]) J. H. Carver, R. D. Edge und D. H. Wilkinson, Phil. Mag. *44*, 404 (1953).
[6]) E. A. Whalin und A. O. Hanson, Phys. Rev. *89*, 324 (1953).
[7]) H. E. Johns, L. Katz, R. A. Douglas und R. N. H. Haslam, Phys. Rev. *80*, 1062 (1950).
[8]) L. I. Schiff, Phys. Rev. *70*, 87 (1946).
[9]) P. Erdös und P. Scherrer, P. Stoll, Helv. Phys. Acta *30*, 639 (1958).
[10]) L. Katz und A. S. Penfold, Phys. Rev. *81*, 815 (1951).
[11]) B. Forkman, Arkiv f. Fysik *11*, 265 (1956).
[12]) J. Sawicki, Nucl. Phys. *4*, 248 (1957).
[13]) J. Blatt und V. Weisskopf, Theoretical Nuclear Physics (1955).

Druckabhängigkeit der Sättigungsladung von Po-α-Teilchen in CO_2, A-CO_2- und A-CH_4-Mischungen

von **F. Widder** und **P. Huber**, Universität Basel

(4. VII. 1958)

Summary. In this paper the anomalous dependence of the saturation charge of Po-α-particles on pressure in ionization chambers filled with CO_2 is examined. For this purpose new measurements have been made with carefully purified CO_2. By means of the theory of G. JAFFÉ a graphic representation of saturation curves could be found, which gives a saturation charge independent of pressure. There the dependence of the mobility of electrons on field strength must be taken into account.

Moreover mixtures of 95% A + 5% CO_2, 70% A + 30% CH_4 and 80% A + 20% CH_4 are investigated. These gas mixtures also show a dependence of the saturation charge of Po-α-particles on pressure when the dependence of the mobility of electrons on field strength is neglected. By taking into account the varying mobility of electrons, this dependence on pressure vanishes in the case of A–CO_2-mixture and is strongly reduced in the case of A–CH_4-mixtures.

For the average energy loss per ion pair of Po-α-particles the following values are found: CO_2 34,0 $\pm$ 0,3 eV; 95% A + 5% CO_2 25,22 $\pm$ 0,11 eV; 70% A + 30% CH_4 27,43 $\pm$ 0,10 eV; 80% A + 20% CH_4 27,17 $\pm$ 0,12 eV.

1. Einleitung

Es wurde in den letzten Jahren von verschiedenen Autoren[1)2)] bei Kammerfüllungen mit CO_2 eine systematische Verkleinerung der experimentell bestimmten Sättigungsladung von Po-α-Teilchen mit abnehmendem Druck festgestellt. Eine Erklärung für diesen Effekt konnte nicht gegeben werden. Es soll in dieser Arbeit gezeigt werden, dass eine quantitative Erklärung mit Hilfe der Theorie der Ionisation in Kolonnen von G. JAFFÉ[3)] möglich ist.

2. Apparatur und α-Präparat

Für die Untersuchungen wurde eine Parallelplatten-Ionisationskammer mit Schutzring verwendet. Die Elektroden bestehen aus verchromtem Eisen. Der Plattenabstand kann je nach den Messungen zwischen 1 und 4 cm variiert werden. Der Durchmesser der Auffängerelektrode beträgt 4 cm, derjenige der Hochspannungselektrode 10 cm.

In der Mitte der auf negativem Potential gehaltenen Hochspannungselektrode ist als Träger der α-Quelle ein Nickelstift von 2 mm Durchmesser eingeschraubt. Die Oberfläche dieses Stiftes ist hochglanzpoliert und gut entfettet. Brauchbare Quellen konnten auf folgende Weise erhalten werden: Aus mit destilliertem Wasser verdünntem Ra-D-Nitrat, das etwa 50 μC Ra-D pro cm^3 enthält, wird mit Hilfe eines Drahtes ein Tropfen entnommen. Der Halter des Trägerstiftes wird nun mit flüssiger Luft gekühlt. Aus etwa 1 mm Abstand kondensiert sich ein Niederschlag auf die Oberfläche des Stiftes. Mehrfaches Wiederholen ergibt die nötige Intensität des Präparates bei einer Schichtdicke, die so klein ist, dass keine messbare Selbstabsorption auftritt. Die Intensität der in der vorliegenden Arbeit verwendeten Po^{210}-α-Quelle betrug etwa 70 α-Teilchen pro Minute.

Der schon früher beschriebene Impulsverstärker[4)5)] für Ionensammlung besteht aus einer an die Ionisationskammer angebauten Vorstufe mit freiem Gitter und einem sechsstufigen linearen *RC*-Verstärker. Das Frequenzband ist nach oben und unten durch je ein *RC*-Glied variabler Zeitkonstante begrenzt. Das Verhältnis Signal zu Rauschen wird dann optimal, wenn die beiden Zeitkonstanten einander gleich sind. Für die Messungen wurden Zeitkonstanten von der Grössenordnung 10^{-3} sec benützt.

Die Ausgangsimpulse des Verstärkers, welche einen bestimmten Diskriminatorpegel überschreiten, werden in einem photographischen Impulsspektrographen nach Zahl und Grösse sortiert. Gleichzeitig mit den α-Teilchen werden Eichladungen registriert. Die den Po-α-Impulsen entsprechende Impulshöhe wird durch lineare Interpolation zwischen den Eichmarken bestimmt. Der mittlere Fehler des Amplitudenverhältnisses von Po-α-Impuls und Eichimpuls beträgt für jede Aufnahme etwa 0,1%. Die Linearität und die Konstanz der Anordnung wurden mit Eichladungen wiederholt geprüft.

Nähere Einzelheiten der Apparatur, insbesondere die Erzeugung der Eichladungen und die Wirkungsweise des photographischen Impulsspektrographen wurden schon in früheren Arbeiten ausführlich beschrieben[1)6)7)].

3. Theoretischer Teil

Die Theorie der Ionisation in Kolonnen von G. Jaffé[3)] bietet die Möglichkeit, die Ladungsverluste durch Rekombination unter Berücksichtigung der Beweglichkeit und Diffusion der Ladungsträger zu berechnen. Um die Messergebnisse richtig interpretieren zu können, ist es zunächst notwendig, auf diese Theorie näher einzugehen.

Bezeichnen wir mit Q die in der Ionisationskammer gemessene Ladung, mit Q_0 die für den betreffenden Druck geltende Sättigungsladung, so gilt nach JAFFÉ

$$\frac{Q_0}{Q} = 1 + \frac{\alpha N_0}{bu E \sin\varphi} \cdot \frac{S(z)}{4\sqrt{2\pi}}. \tag{1}$$

Hierbei bedeuten:

α: Rekombinationskoeffizient der beiden Ionensorten.
N_0: Lineare Ionisationsdichte (Gesamtzahl der Ionen eines Vorzeichens pro cm Kolonne) unmittelbar nach Entstehen der Ionenkolonne.
b: Ein Mass für den Radius der Kolonne zur Zeit $t = 0$.
t: Zeit vom Entstehen der Kolonne an gerechnet.
u: Mittlere Beweglichkeit der beiden Ionenarten.
E: Elektrische Feldstärke.
φ: Winkel zwischen der Kolonnenachse (Spur des α-Teilchens) und der Feldrichtung.

Die Funktion $S(z)$ hat die Form

$$S(z) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_0^\infty \frac{e^{-s}\, ds}{\sqrt{s(1+s/z)}}. \tag{2}$$

Die Integrationsvariable s ist gegeben durch die Beziehung

$$s = \frac{2u^2 E^2 \sin^2\varphi}{4Dt + b^2} \cdot t^2, \tag{3}$$

wobei D den Diffusionskoeffizienten bedeutet. Der Parameter z ist folgendermassen definiert:

$$z = \frac{1}{2}\left(\frac{u}{D} bE \sin\varphi\right)^2 \tag{4}$$

In den früheren Arbeiten zur Ermittlung der Arbeit pro Ionenpaar verschiedener Gase[1)2)] ging man zur Bestimmung der Sättigungsladung von der Näherungsformel

$$\frac{Q_0}{Q} = 1 + \frac{\text{const}}{E} = 1 + \frac{c(p)}{E} \tag{5}$$

aus, indem man annahm, dass sowohl $\alpha N_0/bu$ als auch $S(z)$ für konstanten Druck als unveränderliche Grössen angesehen werden können. Ferner wurde angenommen, dass für die Impulse maximaler Häufigkeit, die zur Messung von Q verwendet werden, φ stets 90° beträgt, d.h. $\sin\varphi = 1$ ist. Die Sättigungsladung Q_0 wurde durch Extrapolation der Sättigungsgeraden

$$\frac{1}{Q} - \frac{1}{Q_0}\left(1 + \frac{c(p)}{E}\right) = f\left(\frac{1}{E}\right) \tag{5a}$$

für $E \to \infty$ bestimmt. Nach diesen Annahmen, auf die wir im folgenden noch näher eingehen wollen, ist also zu erwarten, dass die Sättigungsgeradenschar, die man nach Gleichung (5a) durch Variation des Druckes erhält, einen gemeinsamen Schnittpunkt auf der Ordinatenachse besitzt, d. h. dass Q_0 druckunabhängig ist.

Das einzige der zahlreichen untersuchten Gase, welches sich nun nicht erwartungsgemäss verhielt, war das Kohlensäuregas. Man fand[2]) besonders im Gebiet kleiner Feldstärken (grosse Distanz der Ionisationskammerelektroden) eine beträchtliche Druckabhängigkeit von Q_0.

Wir wollen nun die oben erwähnten vereinfachenden Annahmen genauer untersuchen und den Einfluss der dabei gemachten Vernachlässigungen auf die Steigung und den Ordinatenschnittpunkt der Sättigungsgeraden (5a) diskutieren. Durch Berücksichtigung von Korrekturen, die sich aus diesen Betrachtungen ergeben, soll eine bessere Näherungsformel zur Bestimmung von Q_0 hergeleitet werden.

Zunächst muss beachtet werden, dass in der Theorie von JAFFÉ gleiche Beweglichkeit und gleicher Diffusionskoeffizient der negativen und positiven Ladungsträger angenommen wurde. Das bedeutet, dass durch Elektronenanlagerung negative Ionen gebildet werden sollen. Nun weist aber CO_2 bei genügender Reinheit keine Elektronenanlagerung auf, wie sich durch Messungen mit Elektronensammlung leicht nachweisen lässt und wie auch schon von anderen Autoren beobachtet wurde[2]) [8]) [9]) [19]). Die Ladungsträger in einer mit CO_2 gefüllten Kammer bestehen also nur aus Elektronen und positiven Ionen. Die Berechnungen von JAFFÉ lassen sich jedoch in derselben Weise auch für Gase ohne Elektronenanlagerung durchführen. Dabei kann man annehmen, dass in der Zeit, während der die Rekombinationsvorgänge stattfinden, nur die Elektronen diffundieren und sich im Feld bewegen, dagegen die Kolonne der positiven Ionen starr bleibt. Unter diesen Voraussetzungen erhält man wiederum die Formel (1), wobei für u die halbe Elektronenbeweglichkeit, für D der halbe Diffusionskoeffizient zu setzen ist. Während nun die Ionenbeweglichkeit für die in der Ionisationskammer verwendeten Feldstärken und Drucke eine Konstante ist, kann man bei Elektronen nicht mehr mit konstanter Beweglichkeit rechnen[10]). u wird für Elektronen von der Feldstärke abhängig. - Damit erweist sich die Annahme, dass der Faktor $\alpha N_0/bu$ in Formel (1) nur vom Druck abhängt, als falsch. Um eine bessere Näherungsformel als (5) zu erhalten, müssen wir also die Feldstärkeabhängigkeit der Elektronenbeweglichkeit berücksichtigen. Die Faktoren α, N_0 und b sind unabhängig von der Feldstärke.

Die Funktion $S(z)$ ist nach der Definition des Parameters z (Formel 4) stets von der Feldstärke abhängig. Bestehen die Ladungsträger nur aus Ionen, so wird infolge des kleinen Wertes der Diffusionskonstanten D der

Parameter z so gross, dass $S(z)$ für die in der Ionisationskammer verwendeten Feldstärken in guter Näherung durch den Grenzwert $S(\infty) = 1$ ersetzt werden kann. Für Elektronen ist nun D um drei bis vier Zehnerpotenzen grösser als für Ionen. Dadurch nimmt z Werte an, für welche man nicht unwesentliche Abweichungen der Funktionswerte $S(z)$ vom Grenzwert 1 erwarten muss. Da diese Abweichungen von der Feldstärke abhängen, dürfen wir in Formel (1) $S(z)$ nicht mehr als Konstante betrachten, sondern müssen den Einfluss der Diffusion der Elektronen berücksichtigen.

Schliesslich ist noch der Einfluss des ballistischen Defizits auf die Amplitudenverteilung des Impulsspektrums zu diskutieren. Ballistisches Defizit tritt für Gase mit wenig Elektronenanlagerung nur bei hohen Drucken und kleinen Feldstärken auf. Die Berechnung der Übertragung von Ionisationskammerimpulsen durch einen RC-RC-Verstärker[1]) zeigt nun, dass das ballistische Defizit von der Impulsform am Verstärkereingang abhängt. Die Impulsform hängt jedoch vom Winkel φ zwischen der Spur des ionisierenden Teilchens und der Feldrichtung ab. Daraus folgt, dass eine Beziehung zwischen dem ballistischen Defizit und dem Winkel φ bestehen muss. Andererseits folgt aus der Anordnung des α-Präparats in der Kammer (vgl. Abschn. 2) durch eine einfache geometrische Überlegung, dass die Zahl der pro Winkelelement und Zeiteinheit emittierten α-Teilchen proportional $\sin\varphi$ ist. Das Maximum der Amplitudenverteilung des Impulsspektrums wird also stets dem Winkel $\varphi = 90°$ entsprechen, solange kein ballistisches Defizit auftritt. Auch bei Auftreten eines ballistischen Defizits wird nur eine geringfügige Verschiebung des Maximums nach kleineren Winkeln zu erwarten sein. Dies soll jedoch noch durch eine genauere Rechnung nachgewiesen werden (vgl. 3.1).

Berücksichtigen wir nun auf Grund oben stehender Ausführungen die Feldstärkeabhängigkeit der Elektronenbeweglichkeit, den Einfluss der Diffusion der Elektronen auf die Funktion $S(z)$ und den Einfluss des ballistischen Defizits auf die Amplitudenverteilung des Impulsspektrums, so erhalten wir aus Formel (1) statt (5a)

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_0}\left(1 + \frac{K(p)}{u \cdot E} \cdot \frac{S(z)}{\sin\varphi}\right). \tag{6}$$

Die Einflüsse der Faktoren $\sin\varphi$, $S(z)$ und u auf die Steigung und den Ordinatenschnittpunkt der Sättigungsgeraden sollen nun einzeln berechnet werden.

3.1. Einfluss des ballistischen Defizits. Berechnung von cos φ

Nach HAEBERLI[1]) gilt für Gase mit wenig Elektronenanlagerung

$$\beta = 1 - \frac{A}{A_0} \cong \frac{\eta}{6}\left(\frac{\tau}{\tau_0}\right)^2 \cdot \left(\frac{1}{2} - \frac{\eta}{3}\right). \tag{7}$$

wobei

β: ballistisches Defizit.
A: Amplitude bzw. Impulshöhe.
A_0: Amplitude ohne ballistisches Defizit.
τ_0: Zeitkonstante des Verstärkers in sec.
τ: Impulsdauer in sec.
η: Anteil des Ionenstromes an der gemessenen Ladung;

ferner bedeuten

R: Reichweite der α-Teilchen in cm.
d: Elektrodendistanz in cm.
p: Druck in ata.
V: Elektrodenspannung in Volt.
u_+: Beweglichkeit der positiven Ionen ($cm^2\ Volt^{-1}\ sec^{-1}$).

Für die Impulsdauer gilt annähernd

$$\tau \quad 1{,}15 \frac{d \cdot R}{u_+ \cdot V} \cos \varphi, \tag{8}$$

und da

$$\eta = \frac{R}{d} \cos \varphi \ , \tag{9}$$

so ergibt sich schliesslich

$$\cos \varphi \cong \frac{0{,}91}{R} \sqrt[3]{\frac{12}{d} \cdot \beta \cdot \tau_0^2 \cdot u_+^2 \cdot V^2} \ . \tag{10}$$

Mit Hilfe dieser Formel fanden wir anhand einer Messreihe mit einer Elektrodendistanz von 15 mm (vgl. 4.1), dass der Faktor sin φ in Formel (1) bzw. (6) für die verwendeten Feldstärken und Drucke nie kleiner als 0,998 wird. Für $\beta = 0$ ist sin φ exakt gleich 1.

Daraus sieht man sofort, dass die Berücksichtigung der Winkelabhängigkeit des ballistischen Defizits keinen Einfluss auf die Sättigungsgeraden hat. Wir können daher im folgenden sin φ stets gleich 1 setzen.

3.2. Einfluss der Diffusion. Berechnung von $S(z)$

Der Einfluss der Funktion $S(z)$ auf die extrapolierte Sättigungsladung lässt sich mit Hilfe der Einsteinschen Beziehung zwischen Beweglichkeit und Diffusionskonstante abschätzen:

$$D = \frac{kT}{e} \cdot \varepsilon \cdot u [\mathrm{cm^2 sec^{-1}}]. \tag{11}$$

ε bedeutet das Verhältnis von mittlerer kinetischer Energie zu thermischer Energie des Elektrons:

$$\varepsilon = \frac{\frac{1}{2} m \bar{v}^2}{\frac{3}{2} kT} \ . \tag{12}$$

Damit ergibt sich für Zimmertemperatur ($T = 290°$ K) folgende Formel für z:

$$z = 800 \left(\frac{E}{\varepsilon} \cdot b\right)^2 = 800 \left(\frac{E}{\varepsilon} \cdot \frac{b_0}{p_{\text{ata}}}\right)^2. \tag{13}$$

wobei b_0 den Wert für b bei einem Druck von 1 ata bedeutet. Für CO_2 ist nach JAFFÉ $b_0 = 1{,}2 \cdot 10^{-3}$ cm; $\varepsilon = \varepsilon(E/p)$ ist bei HEALEY und REED[8]) angegeben. Setzt man in (13) die bei den Messungen verwendeten Werte für die Feldstärke, den Druck und die sich hieraus ergebenden ε-Werte für CO_2 ein, so sieht man, dass z sehr grosse Beträge annimmt. Für die schon erwähnte Messreihe mit einer Elektrodendistanz von 15 mm und Drucken von 3, 6, 8 und 10 ata liegt z zwischen den Werten $32 \leqq z \leqq 460$. Im Bereich so grosser z-Werte kann man $S(z)$ in guter Näherung mit Hilfe der (semikonvergenten) Reihe

$$S(z) \cong \sum_{\nu=0}^{n} \frac{(-1)^\nu \cdot (2\nu)!^2}{\nu!^3} \cdot \frac{1}{(4z)^\nu} \quad (n < z) \tag{14}$$

berechnen[12]).

Für die weiteren Betrachtungen wollen wir von Gleichung (6) ausgehen. Es wird sich dabei als zweckmässig erweisen, folgende Abkürzungen einzuführen:

$$x = 1/E \ , \ y = 1/Q \ , \ y_0 = 1/Q_0;$$

ferner soll stets $\sin \varphi = 1$ und $u = \text{const.}$ sein. Setzen wir zunächst auch $S(z) = \text{const.} = 1$ und tragen die Resultate der bei einem bestimmten

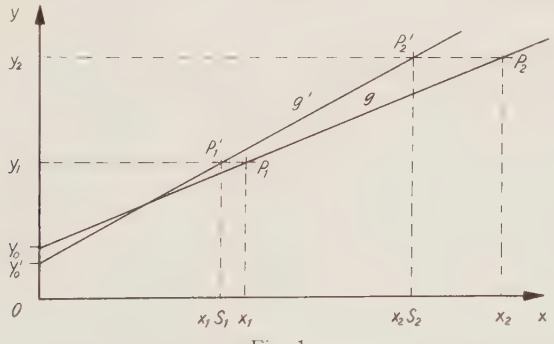


Fig. 1

Einfluss von $S(z)$ auf Steigung und Ordinatenschnittpunkt einer Sättigungsgeraden (der besseren Übersicht wegen sind die Abweichungen zwischen g und g' stark übertrieben gezeichnet).

Druck p aufgenommenen Messreihe im (x, y)-Koordinatensystem auf, so erhalten wir nach der bekannten Methode der kleinsten Quadrate eine Gerade g (Fig. 1), die wir als «unkorrigierte Sättigungsgerade» bezeichnen wollen. Durch Berücksichtigung der Feldstärkeabhängigkeit von $S(z)$ er-

halten wir aus g eine «korrigierte Sättigungsgerade» g'. Dabei verfahren wir folgendermassen:

Wir markieren zwei Punkte auf g: $P_1(x_1,y_1)$ und $P_2(x_2,y_2)$. Mit Hilfe von (13) und (14) berechnen wir sodann S_1 und S_2, das sind die Werte von $S(z)$ an den Stellen x_1 und x_2. Durch Multiplikation der Abszissenwerte x_1 und x_2 mit S_1 bzw. S_2 erhalten wir die Punkte $P'_1(x_1S_1, y_1)$ und $P'_2(x_2S_2,y_2)$, die die korrigierte Sättigungsgerade g' bestimmen. Der Ordinatenschnittpunkt $(0, y_0)$ geht bei dieser Korrektur in den Punkt $(0, y'_0)$ über, d. h. die für Extrapolation nach $E = \infty$ erhaltene Sättigungsladung Q_0 erfährt eine Änderung

$$\Delta Q_0 = Q'_0 - Q_0 = 1/y'_0 - 1/y_0 \ .$$

Die relative Änderung $\Delta Q_0/Q_0 = -\Delta y_0/y_0$ lässt sich wie folgt berechnen:

Die Gleichung der Geraden g lautet:

$$y = \frac{y_2 - y_1}{x_2 - x_1}\, x + \frac{y_1x_2 - y_2x_1}{x_2 - x_1}, \tag{15a}$$

die Gleichung der Geraden g':

$$y = \frac{y_2 - y_1}{x_2S_2 - x_1S_1}\, x + \frac{y_1x_2S_2 - y_2x_1S_1}{x_2S_2 - x_1S_1}\ . \tag{15b}$$

Daraus ergibt sich sofort

$$y_0 = \frac{y_1x_2 - y_2x_1}{x_2 - x_1} \tag{16a}$$

$$y'_0 = \frac{y_1x_2S_2 - y_2x_1S_1}{x_2S_2 - x_1S_1} \tag{16b}$$

und

$$\frac{\Delta Q_0}{Q_0} = -\frac{\Delta y_0}{y_0} \cong \frac{y_0 - y'_0}{y_0} = 1 - \frac{(y_1x_2S_2 - y_2x_1S_1)\cdot(x_2 - x_1)}{(y_1x_2 - y_2x_1)\cdot(x_2S_2 - x_1S_1)}\ . \tag{17}$$

Mit dieser Formel ergibt sich für die oben schon erwähnte Messreihe ($d = 15$ mm) für die reziproke Sättigungsladung bei $p = 10$ ata eine Korrektur von -3%. Die Abweichung vom genauesten Wert für $1/Q_0$ (bei $p = 3$ ata) beträgt jedoch -57% (vgl. Fig. 2). Daraus geht eindeutig hervor, dass die Abhängigkeit der Funktion $S(z)$ von der Feldstärke und der Diffusion nicht für die anomale Druckabhängigkeit der Sättigungsladung für Po-α-Teilchen in CO_2 verantwortlich gemacht werden kann. – Das Vorzeichen der Korrektur bedeutet sogar eine Vergrösserung des Effektes. – Bei 8 ata ist der absolute Betrag der Korrektur schon kleiner als ein Prozent, d. h. er liegt schon innerhalb der Fehlergrenzen für $1/Q_0$, und für die Drucke 6 ata und 3 ata ist überhaupt kein Einfluss mehr festzustellen. Aus diesem Grunde erschien es uns berechtigt, die durch $S(z)$ bedingten Korrekturen gegenüber dem Einfluss der im nächsten Abschnitt behandelten Feldstärkeabhängigkeit der Elektronenbeweglichkeit u zu vernachlässigen.

3.3. Einfluss der Elektronenbeweglichkeit

Berücksichtigen wir nach den obigen Ausführungen nur die Veränderlichkeit von u und nehmen $S(z)$ als konstant an, so folgt aus (6) unmittelbar

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_0}\left(1 + \frac{k(p)}{u \cdot E}\right). \tag{18}$$

und da $u \cdot E$ gleich der Elektronenwanderungsgeschwindigkeit v ist (Definition von u):

$$\frac{1}{Q} = f\left(\frac{1}{v}\right) = \frac{1}{Q_0}\left(1 + \frac{k(p)}{v}\right). \tag{18a}$$

Aus dieser Formel folgt unmittelbar: Rührt die anomale Druckabhängigkeit der Sättigungsladung beim CO_2 tatsächlich von der Feldstärkeabhängigkeit der Elektronenbeweglichkeit her, so müssen die verschiedenen Sättigungsgeraden, die sich durch Variation des Druckes aus Gleichung (18a) ergeben, einen und denselben Ordinatenschnittpunkt haben. Dieser Punkt auf der $1/Q$-Achse gibt dann den druckunabhängigen Wert der reziproken Sättigungsladung $1/Q_0$. Dies soll nun anhand der Versuchsergebnisse geprüft werden.

4. Diskussion der Messergebnisse

4.1. Ergebnisse für CO_2

Die für das CO_2 verwendete Gasreinigungsanlage war dieselbe, wie sie schon in einer früheren Arbeit beschrieben wurde[2]). Um ein möglichst reines Gas zu erhalten, reinigten wir kontinuierlich, d. h. wir liessen auch während der Messung das Gas ständig durch die Ionisationskammer und den Calciumofen zirkulieren.

Auf diese Weise wurden nun die Sättigungskurven für 3, 6, 8 und 10 ata CO_2 bei einer Elektrodendistanz von 15 mm ausgemessen. Das Ergebnis ist aus Figur 2 ersichtlich: Die mit Hilfe der Gleichung (5a) erhaltenen Sättigungsgeraden zeigen genau dieselben Eigenschaften, die schon früher[1])[2]) festgestellt wurden, nämlich eine systematische Vergrösserung der Sättigungsladung mit steigendem Druck.

Figur 3 zeigt den Verlauf der Sättigungsgeraden bei Berücksichtigung der Elektronenbeweglichkeit. Auf der Abszisse sind hier nicht die reziproken Feldstärken, sondern die reziproken Elektronenwanderungsgeschwindigkeiten aufgetragen (vgl. Gl. 18a). Die Werte für die Wanderungsgeschwindigkeiten entnahmen wir der graphischen Darstellung der v-Kurve (das ist der Verlauf der v-Werte als Funktion von E/p) bei Rossi und Staub[11]). Diese v-Kurve wurde durch Mittelung aller bisher bekannten Messungen der Elektronenwanderungsgeschwindigkeit in CO_2 erhalten. Leider sind die angeführten v-Werte nicht sehr genau, wie schon die Streuung der einzelnen Messpunkte erkennen lässt. Man muss mit einer Unsicherheit von 10% rechnen. Genauere Werte konnten wir bisher

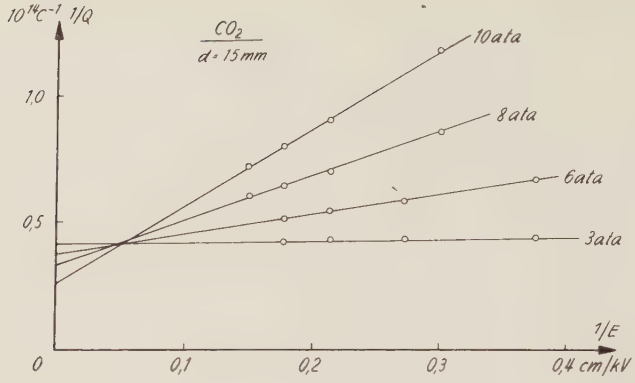


Fig. 2

Sättigungsgeraden von CO_2 bei verschiedenen Fülldrucken und 15 mm Elektrodendistanz. In der Abszisse ist die reziproke Feldstärke in Einheiten von cm/kV aufgetragen, in der Ordinate die reziproke Ladung in 10^{14} C^{-1}.

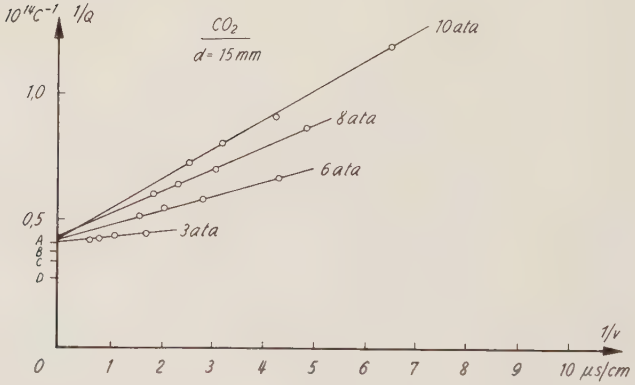


Fig. 3

Sättigungsgeraden von CO_2 bei verschiedenen Fülldrucken und 15 mm Elektrodendistanz. In der Abszisse ist die reziproke Elektronenwanderungsgeschwindigkeit in Einheiten von μs/cm aufgetregen, in der Ordinate die reziproke Ladung in 10^{14} C^{-1}. Die markierten Punkte *A*, *B*, *C*, *D* auf der Ordinate bezeichnen die Schnittpunkte der unkorrigierten Geraden für 3, 6, 8, 10 ata (vgl. Fig. 2).

in der Literatur nicht finden. Trotzdem ist der Einfluss der Elektronenbeweglichkeit eindeutig festzustellen, wenn wir die Figuren 2 und 3 miteinander vergleichen: Die Druckabhängigkeit der Sättigungsladung ist in Figur 3 verschwunden; sämtliche korrigierten Sättigungsgeraden liefern denselben Wert für $1/Q_0$. Die geringe Streuung der Ordinatenschnittpunkte liegt innerhalb der Messfehlergrenzen. Bestimmt man mit Hilfe des Mittelwertes der Ordinatenschnittpunkte die Arbeit pro Ionenpaar für Po-α-Teilchen in CO_2, so erhält man den Wert $W = 34{,}0 \pm 0{,}3$ eV. Dieser Wert stimmt mit den Resultaten früherer Arbeiten überein (vgl. Tabelle IV bei BIBER, HUBER und MÜLLER[2]).

In Figur 4 und 5 sind die korrigierten Sättigungsgeraden für Elektrodendistanzen von 30 und 40 mm dargestellt. Sie wurden aus den Messresultaten von BIBER, HUBER und MÜLLER durch Berücksichtigung der Elektronenbeweglichkeit gemäss Gleichung (18) erhalten. Bei $d = 40$ mm (Fig. 5) scheint noch eine kleine, wenn auch stark reduzierte Druckabhängigkeit der Sättigungsladung vorhanden zu sein. Es lässt sich jedoch zeigen, dass die Unterschiede der extrapolierten $1/Q_0$-Werte innerhalb der durch die Unsicherheit der Elektronenwanderungsgeschwindigkeit bestimmten Fehlergrenzen liegen. Die Unsicherheit der v-Werte wächst mit abnehmender Feldstärke.

Es ist zunächst überraschend, dass sowohl die korrigierten Sättigungskurven als auch die unkorrigierten die Form von Geraden haben. Geben die ersteren wirklich den wahren Sachverhalt wieder, so müssten nach Gleichung (18) die letzteren gekrümmt sein. Diese Tatsache lässt sich folgendermassen erklären: Das verwendete Hochspannungsnetzgerät hat einen ganz bestimmten Spannungsbereich (1–11 kV); variieren wir nun bei fester Elektrodendistanz (festem Druck) den Druck (die Elektrodendistanz), so erhalten wir wegen der Beziehung $E/p = V/dp$ für jedes p (jedes d) einen andern E/p-Bereich. Innerhalb eines einzelnen solchen Bereiches lässt sich nun wegen der schwachen Krümmung die v-Kurve sehr gut durch eine Gerade approximieren, jedoch haben die zu verschiedenen Bereichen gehörigen Geraden verschiedene Steigungen. Für jede Sättigungskurve in Figur 2 ist also die Beweglichkeit u in guter Näherung konstant, d. h. die Kurve ist eine Gerade. Für jede Sättigungsgerade (verschiedene p) hat jedoch u einen anderen Wert. Deswegen werden bei Vernachlässigung der Veränderlichkeit von u die Steigungen der Sättigungsgeraden und somit auch die extrapolierten Ordinatenschnittpunkte falsch bestimmt.

4.2. Messergebnisse anderer Autoren[1][2] *an elektropositiven Gasen*

Es ist hier die Frage zu klären, ob der untersuchte Effekt für das CO_2 spezifisch ist, bzw. warum bei anderen elektropositiven Gasen nicht dieselbe Druckabhängigkeit der Sättigungsladung gefunden wurde. Unter-

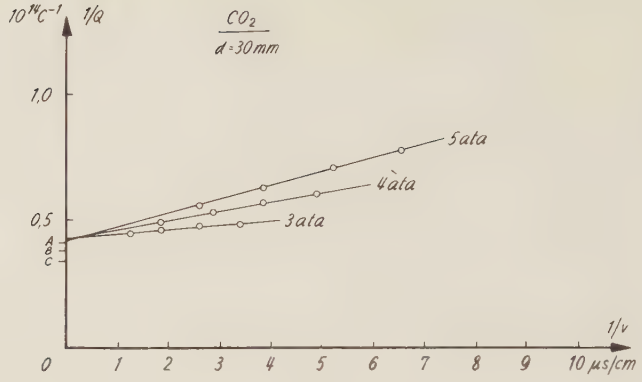


Fig. 4

Sättigungsgeraden von CO_2 bei 30 mm Elektrodendistanz. Die markierten Punkte auf der Ordinate *A*, *B*, *C* bezeichnen die Schnittpunkte der unkorrigierten Geraden für 3, 4, 5 ata. Einheiten wie Figur 2.

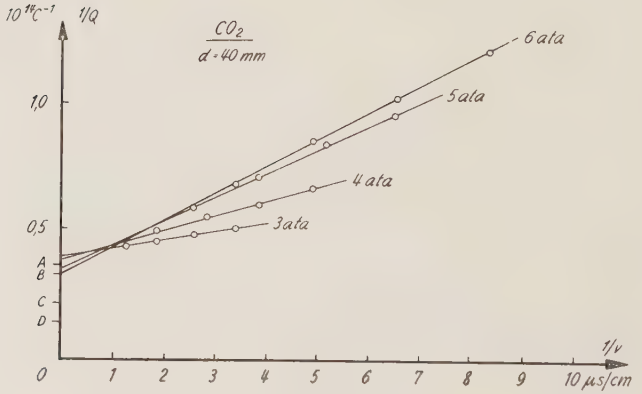


Fig. 5

Sättigungsgeraden von CO_2 bei 40 mm Elektrodendistanz. Die markierten Punkte auf der Ordinate *A*, *B*, *C*, *D* bezeichnen die Schnittpunkte der unkorrigierten Geraden für 3, 4, 5, 6 ata. Einheiten wie Figur 3.

suchungen liegen vor für die Gase He, H_2, N_2, A, CH_4, BF_3, NH_3 und H_2S. Der Grund ist nach obenstehenden Ausführungen offenbar im Verlauf der v-Kurven dieser Gase zu suchen. Zeigen diese Kurven einen geradlinigen Verlauf, so kann der Effekt nicht auftreten, sind sie stark gekrümmt, so sollte der Effekt sich zeigen.

Für Argon[13][14]) und N_2[13]) sowie für CH_4[14]) sind genaue v-Werte bereits gemessen worden; sie zeigen tatsächlich in dem untersuchten Bereich kleiner E/p-Werte einen linearen Verlauf, bzw. sind so schwach gekrümmt, dass sich innerhalb der Messfehlergrenzen der Effekt nicht zeigen kann. Für BF_3 ist der lineare Verlauf der v-Kurve aus der graphischen Darstellung bei Rossi und Staub[11]) ersichtlich. Für NH_3 findet man Tabellen für v bei Healey und Reed[8]) im Bereiche $4 \leq E/p \leq 32$ Volt/cm·Torr. Eine Extrapolation dieser Werte lässt für den Bereich 1 4 Volt/cm·Torr ebenfalls Linearität erwarten. Für H_2S sind bisher noch keine v-Kurven gemessen worden.

Für H_2 und He sind ebenfalls Werte bei Healey und Reed angegeben, jedoch lassen sich daraus in dem für unsere Betrachtungen massgebenden Gebiet von etwa 0,10–0,80 Volt/cm·Torr keine zuverlässigen Angaben über v gewinnen; dasselbe gilt für die von Nielsen et al.[15][16]) sowie von Hornbeck[17]) veröffentlichten $(E/p, v)$-Diagramme. Dennoch scheint bei beiden Gasen in diesem Gebiet eine Krümmung der v-Kurven vorhanden zu sein, die einen nachweisbaren, wenn auch schwachen Effekt erwarten liesse.

Es wäre nun naheliegend gewesen, Wasserstoff und Helium bezüglich der Sättigungsladung für verschiedene Drucke zu untersuchen. Es schien uns jedoch interessanter, Gasmischungen auszumessen, deren v-Werte wesentlich genauer bekannt sind als die des H_2 und des He und damit auch eine zuverlässigere Diskussionsbasis gewährleisten.

5. Untersuchungen an Gasmischungen

Die für unsere Untersuchungen günstigsten Gase bzw. Gasmischungen sind solche, bei denen die Elektronenbeweglichkeit innerhalb eines mit unseren apparativen Hilfsmitteln realisierbaren E/p-Bereiches stark variiert; das bedeutet starke Krümmung der v-Kurven innerhalb dieses Bereiches. Der Unterschied der Darstellungen gemäss Gleichung (5a) bzw. (18a) lässt sich am besten an solchen Gasen feststellen, bei denen die v-Kurven einen geradlinigen und einen gekrümmten Teil aufweisen. Ein derartiges Verhalten zeigen die von English und Hanna[14]) gemessenen v-Kurven für $A-CO_2$- und $A-CH_4$-Mischungen (vgl. auch Fig. 12 und 13). Wir wählten für unsere Untersuchungen folgende Mischungen:

1. 95% A + 5% CO_2
2. 70% A + 30% CH_4
3. 80% A + 20% CH_4.

Es muss hier noch bemerkt werden, dass für diese Gasmischungen keinerlei Angaben für die Grössen ε und b_0 (vgl. 3.2), die man zur Berechnung von z und damit auch von $S(z)$ benötigt, bekannt sind. Es ist durchaus möglich, dass der Einfluss der Funktion $S(z)$ auf die Sättigungskurven dieser Gase nicht mehr vernachlässigbar ist. $\varepsilon = \varepsilon(E/p)$ kann sich nämlich im untersuchten Feldstärkebereich stark ändern (wie z. B. beim Argon), während es für CO_2 in erster Näherung konstant ist. Wir können daher nicht erwarten, dass die Sättigungskurven nach Gleichung (18a) so gut mit der Theorie übereinstimmen, wie dies für CO_2 der Fall war.

5.1. Messergebnisse für Mischung 1:95% A + 5% CO_2

In Figur 6 sind die Messergebnisse für die Drucke 5, 8, 12 und 15 ata nach Gleichung (5a) dargestellt. Die Distanz der Ionisationskammerelektroden betrug bei diesen wie auch bei allen folgenden Messungen 20 mm. Bei einem Druck von 5 ata tritt im ganzen untersuchten Feldstärkebereich Sättigung auf, d. h. die gemessenen Ladungen sind unabhängig von der Feldstärke. Daher ist die Sättigungskurve für 5 ata eine waagrechte Gerade. Bei 8 ata erhalten wir eine schwach gekrümmte Sättigungskurve, die für grosse Feldstärken in die Sättigungsgerade für 5 ata übergeht. Die Krümmung dieser Kurve ist allerdings so schwach, dass man rein graphisch innerhalb der Messfehlergrenzen ebenso gut eine Gerade durch die Messpunkte legen könnte. Mit Hilfe der Gauss'schen Methode der kleinsten Quadrate lässt sich jedoch zeigen, dass man eine Parabel 2. Grades besser dem Verlauf der Messpunkte anpassen kann als eine Gerade. Diese Parabel verläuft zwar sehr flach, hat aber doch eine nachweisbare Krümmung. Das gleiche gilt für die Sättigungskurve bei 12 ata. Hier ist die Parabel durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet. Aus Gründen, auf die wir später (Abschn. 6) näher eingehen wollen, wurde der flache Verlauf der Sättigungsparabel für grosse $1/E$-Werte durch eine Gerade approximiert. Durch Extrapolation für $E \to \infty$ erhält man mit Hilfe dieser Geraden einen Ordinatenschnittpunkt, der beträchtlich vom $1/Q_0$-Wert der Sättigungsgeraden für 5 ata abweicht. Bei einem Druck von 15 ata liegen alle Messpunkte auf einer Geraden; es lässt sich hier keine Krümmung der Sättigungskurve nachweisen. Der durch Extrapolation erhaltene Ordinatenschnittpunkt fällt gerade mit dem Punkt zusammen, der sich durch lineare Extrapolation der Sättigungskurve für 12 ata bei kleinen Feldstärken ergab.

Figur 7 zeigt den Verlauf der Sättigungskurven gemäss Gleichung (18a). Hier ist als Abszisse statt $1/E$ die reziproke Wanderungsgeschwindigkeit $1/v$ der Elektronen aufgetragen. In dieser Darstellung haben sämtliche Sättigungskurven die Form von Geraden. Oberhalb eines bestimmten v-Wertes ($\sim 3{,}7$ cm/μsec, in der Figur durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet) machen sich jedoch bei allen Sättigungsgeraden starke

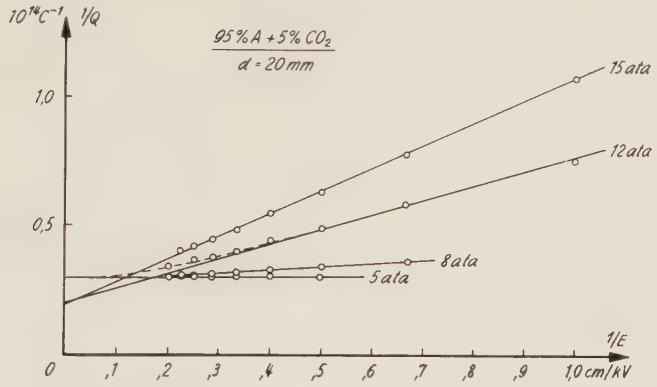


Fig. 6

Sättigungskurven von 95% A + 5% CO_2 bei 20 mm Elektrodendistanz. Einheiten wie Figur 2.

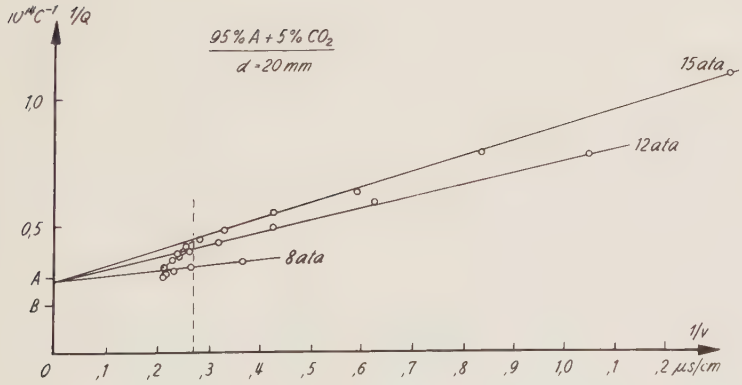


Fig. 7

Sättigungskurven von 95% A + 5% CO_2 bei 20 mm Elektrodendistanz. Die markierten Punkte auf der Ordinate *A*, *B* bezeichnen die Schnittpunkte der unkorrigierten Kurven für 5 und 8 bzw. 12 und 15 ata (vgl. Fig. 6). Einheiten wie Figur 3.

Abweichungen vom geradlinigen Verlauf bemerkbar. Die Sättigungskurve für 5 ata schrumpft in dieser Darstellung sogar zu einem Punkt zusammen. Die Ursachen dieser Effekte sollen im nächsten Abschnitt diskutiert werden. Wichtig ist hier aber noch die Feststellung, dass sich durch Extrapolation der linearen Bereiche der Sättigungskurven für 8, 12 und 15 ata eine Sättigungsladung ergibt, die mit der wahren Sättigungsladung innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmt.

5.2. Messergebnisse für Mischung 2: 70% A + 30% CH_4

In Figur 8 und 9 sind die Ergebnisse der Messungen an einer Mischung von 70% A + 30% CH_4 wiedergegeben. Auch hier finden wir nach Gleichung (5a) eine Druckabhängigkeit der Sättigungsladung (Fig. 8). Bei einem Druck von 2 ata tritt vollständige Sättigung im untersuchten Feldstärkebereich auf: die Sättigungskurve für 2 ata ist eine waagrechte Gerade. Für 5 ata ergibt sich bei grossen Feldstärken deutlich eine Krümmung der Sättigungskurve (gestrichelt gezeichnet). Eine Extrapolation dieser Kurve für $E \to \infty$ liefert dieselbe Sättigungsladung wie die Sättigungsgerade für 2 ata. Der lineare Teil der Sättigungskurve für kleine Feldstärken ergibt bei Extrapolation einen wesentlich grösseren Wert für Q_0. Für Drucke $p \geqq 7$ ata tritt bei kleinen Feldstärken grosses ballistisches Defizit auf ($> 10\%$), so dass die mit Hilfe einer Näherungsformel korrigierten Werte für die reziproken Ladungen sehr ungenau werden und sich für unsere Auswertungen nicht eignen. Ausserdem zeigt sich mit zunehmendem ballistischem Defizit eine allmähliche Verbreiterung des Signals am Verstärkerausgang. Dies kann aber nur durch eine teilweise Elektronenanlagerung erklärt werden: die in der Nähe der Hochspannungselektrode gebildeten negativen Ionen verlängern durch ihre grosse Laufzeit zur Auffängerelektrode die Impulsdauer. Durch eine teilweise Elektronenanlagerung ändert sich aber die mittlere Beweglichkeit der Ladungsträger in der Kammer, d. h. wir dürfen in Formel (6) bzw. (18) für u nicht mehr die Elektronenbeweglichkeit einsetzen. Damit sind die bei der Herleitung von Gleichung (18a) gemachten Voraussetzungen nicht mehr erfüllt. Aus diesem Grunde haben wir auf die Ausmessung der Sättigungskurven für Drucke $\geqq 7$ ata verzichtet.

Die Darstellung der Sättigungskurven gemäss Gleichung (18a), bei der als Abszisse die reziproke Elektronenwanderungsgeschwindigkeit aufgetragen ist, ergibt bei einem Druck von 2 ata ebenfalls eine waagrechte Gerade (Fig. 9) und denselben Wert für die Sättigungsladung Q_0, der aus der Darstellung nach (5a) folgt. Auch bei 5 ata erhält man für kleine Feldstärken eine Gerade, deren Schnittpunkt mit der Ordinatenachse innerhalb der Fehlergrenzen mit $1/Q_0$ übereinstimmt. Oberhalb eines bestimmten v-Wertes ($\sim 7{,}7$ cm/μsec) treten auch hier starke Abweichun-

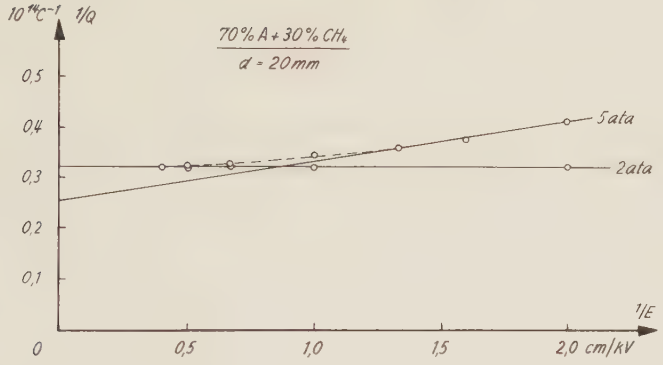


Fig. 8

Sättigungskurven von 70% A + 30% CH_4 bei 20 mm Elektrodendistanz. Einheiten wie Figur 2.

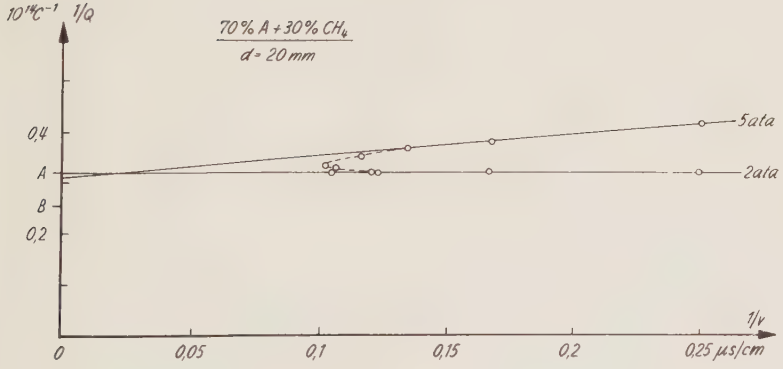


Fig. 9

Sättigungskurven von 70% A + 30% CH_4 bei 20 mm Elektrodendistanz. Die markierten Punkte auf der Ordinate *A*, *B* bezeichnen die Schnittpunkte der unkorrigierten Kurven für 2 und 5 ata (vgl. Fig. 8). Einheiten wie Figur 3.

gen vom geradlinigen Verlauf auf. Die (gestrichelt gezeichnete) Sättigungsparabel geht für grosse Feldstärken in die Sättigungsgerade für 2 ata über. Der Grund liegt in der Tatsache, dass die Wanderungsgeschwindigkeit v der Elektronen in dem Feldstärkebereich, der unmittelbar vor dem Sättigungsbereich liegt, mit zunehmendem E abnimmt (vgl. Abschn. 6).

5.3. Messergebnisse für Mischung 3: 80% A + 20% CH_4

Figur 10 und 11 zeigen den Verlauf der Sättigungskurven für das Gemisch 80% A + 20% CH_4. Man sieht sofort die Ähnlichkeit mit den in 5.2 beschriebenen Sättigungskurven. Mit Ausnahme von zwei wesentlichen Unterschieden gilt für die Mischung 3 genau dasselbe wie für die Mischung 2. Diese beiden Unterschiede sind folgende:

1. Die Druckabhängigkeit der Sättigungsladung, die sich aus (5a) ergibt, ist für Mischung 3 geringer als für Mischung 2.

2. Die Darstellung der Sättigungskurven nach (18a) ergibt für Mischung 2 keine Druckabhängigkeit der Sättigungsladung (vgl. 5.2), während für Mischung 3 die Druckabhängigkeit der Sättigungsladung zwar verringert wird, aber doch nicht ganz verschwindet: der Unterschied der durch Extrapolation der linearen Bereiche erhaltenen $1/Q_0$-Werte überschreitet die Fehlergrenzen.

6. Diskussion der Messresultate an den Gasmischungen

Der Verlauf der Sättigungskurven für die verschiedenen Gasmischungen lässt sich am besten an Hand der v-Kurven erklären. In Figur 12 ist die Elektronenwanderungsgeschwindigkeit v in der Mischung 1 (95% A + 5% CO_2) als Funktion von E/p nach den Messergebnissen von ENGLISH und HANNA[14]) dargestellt. E/p ist in Einheiten von Volt/cm·Torr aufgetragen, v in cm/μsec. Figur 13 zeigt die v-Kurven von Mischung 2 (70% A + 30% CH_4) und 3 (80% A + 20% CH_4) in denselben Einheiten.

6.1. Mischung 1: 95% A + 5% CO_2

Die Messreihe für 15 ata erstreckt sich (mit Ausnahme von zwei Messungen bei grossen Feldstärken) über einen E/p-Bereich von etwa 0,1 bis 0,3 Volt/cm·Torr. Innerhalb dieses Bereiches, der in Figur 12 mit I bezeichnet ist, wächst v linear mit zunehmendem E/p, d. h. die Beweglichkeit u der Elektronen ist in I konstant. Wir müssen daher in der Darstellung nach Gleichung (5a) einen geradlinigen Verlauf der Sättigungskurve für 15 ata erwarten, was auch durch Figur 6 bestätigt wird. Die Messreihe für 12 ata erstreckt sich über einen E/p-Bereich, der zum Teil in I, zum Teil in II verläuft. Wie aus Figur 12 ersichtlich, ist die v-Kurve innerhalb II (ca. 0,3–0,6 Volt/cm·Torr) stark gekrümmt: u ist nicht mehr

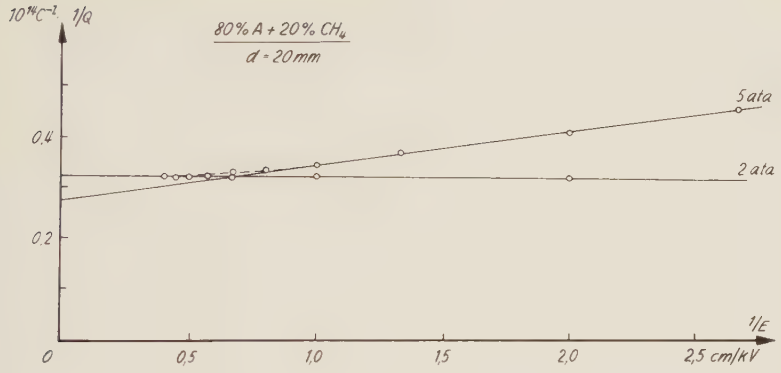


Fig. 10

Sättigungskurven von 80% A + 20% CH_4 bei 20 mm Elektrodendistanz Einheiten wie Figur 2.

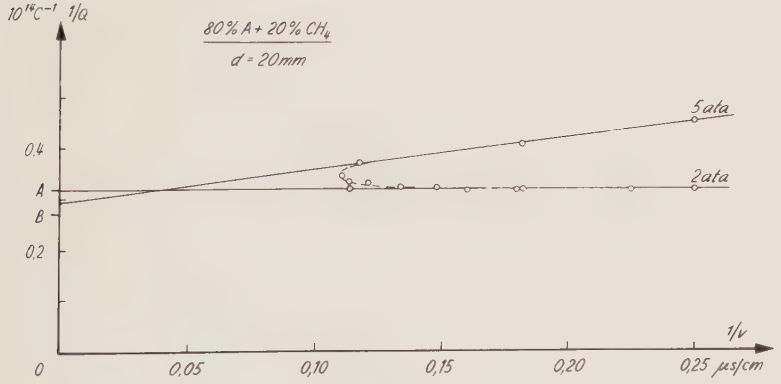


Fig. 11

Sättigungskurven von 80% A + 20% CH_4 bei 20 mm Elektrodendistanz. Die markierten Punkte auf der Ordinate *A*, *B* bezeichnen die Schnittpunkte der unkorrigierten Kurven für 2 und 5 ata (vgl. Fig. 10). Einheiten wie Figur 3.

konstant, sondern von der Feldstärke abhängig. Danach sollte die Sättigungskurve für 12 ata einen geradlinigen Verlauf für kleine Feldstärken und einen gekrümmten Verlauf für grosse Feldstärken zeigen. Auch dies wird durch die Messresultate bestätigt. Bei einem Druck von 8 ata liegen für die verwendeten Feldstärken sämtliche E/p-Werte innerhalb Bereich II der v-Kurve. Die Sättigungskurve für 8 ata kann demnach keine Gerade sein. Eine Krümmung der gemessenen Kurve lässt sich auch tatsächlich feststellen (vgl. 5.1). Bei 5 ata tritt, wie schon erwähnt, im ganzen untersuchten Feldstärkebereich Sättigung auf. Da Q konstant ist, erhalten wir in Figur 6 eine waagrechte Gerade, deren Ordinatenschnittpunkt den reziproken Wert der Sättigungsladung Q_0 ergibt. Durch Extrapolation der Sättigungsgeraden für 15 und 12 ata findet man aber einen bedeutend kleineren $1/Q_0$-Wert. Dies liegt offenbar daran, dass die Elektronenwanderungsgeschwindigkeiten bei 5 ata in Bereich III der v-Kurve liegen. Für die Bereiche I und III ergeben sich aber verschiedene Elektronenbeweglichkeiten, daher werden mit Hilfe der Gleichung (5a) die Steigungen und Ordinatenschnittpunkte der Sättigungsgeraden falsch bestimmt. Für genügend grosse Feldstärken muss man auch bei hohen Drucken Sättigung erreichen. Bei unseren Messungen macht sich diese Tatsache daran bemerkbar, dass die Sättigungskurven für 8 und 12 ata durch Extrapolation im Gebiet kleiner $1/E$-Werte in die Sättigungsgerade für 5 ata übergehen und damit auch die richtige Sättigungsladung ergeben. Bei 15 ata liegen in unserer Messreihe nur zwei Punkte in Bereich II der v-Kurve; daher ist eine Krümmung der Sättigungskurve im Gebiet grosser Feldstärken nicht zu erkennen.

Die Darstellung der Sättigungskurven nach Gleichung (18a) (Fig. 7) wurde bereits in 5.1 beschrieben. Es ist noch die Frage zu klären, warum im Gebiet grosser v-Werte bzw. grosser Feldstärken alle Sättigungskurven vom geradlinigen Verlauf abweichen, und warum die Sättigungskurve für 5 ata zu einem Punkt entartet. Letzteres folgt sofort aus der Tatsache, dass im Bereich III der v-Kurve (Fig. 12) v konstant ist, d.h. sich bei Variation der Feldstärke nicht ändert. Da ausserdem die gemessenen Ladungen bei 5 ata alle gleich sind, erhält man im $(1/v, 1/Q)$-Diagramm einen Punkt. Die Sättigungskurven für 8, 12 und 15 ata müssen diesem Punkt als Grenzwert zustreben, da man ja bei jedem Druck durch Erhöhen der Feldstärke schliesslich in das Sättigungsgebiet gelangt. Bemerkenswert ist noch die Tatsache, dass für sämtliche Sättigungskurven in Figur 7 die Abweichungen vom geradlinigen Verlauf oberhalb eines bestimmten v-Wertes beginnen. Dieser Wert beträgt 3,7 cm/μsec ($1/v = 0{,}27$ μsec/cm) und entspricht einem E/p von 0,32 Volt/cm·Torr. Wie aus Figur 12 ersichtlich, liegt dieser Wert gerade am Anfang des Bereiches II, d. h. zu Beginn der starken negativen Krümmung der v-Kurve. Wir wollen darauf noch zurückkommen (vgl. 6.3).

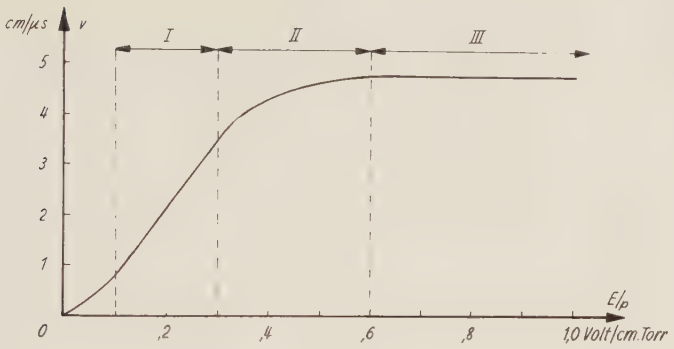


Fig. 12

Elektronenwanderungsgeschwindigkeit v als Funktion von E/p für die Mischung 95% A + 5% CO_2 (Eigenschaften der Bereiche I, II und III siehe Text).

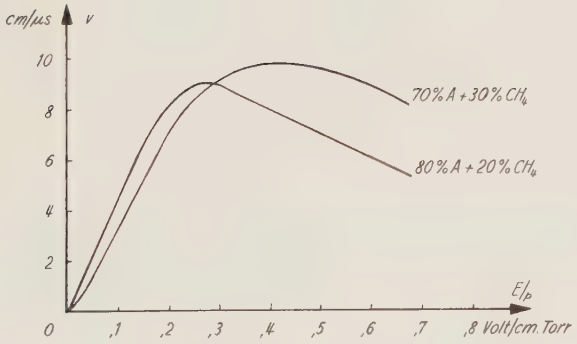


Fig. 13

Elektronenwanderungsgeschwindigkeit v als Funktion von E/p für die Mischungen 70% A + 30% CH_4 und 80% A + 20% CH_4.

6.2. Mischung 2 und 3

Figur 13 stellt die v-Kurven der Mischungen 2 (70% A + 30% CH_4) und 3 (80% A + 20% CH_4) dar. Für Mischung 2 verläuft v im Intervall $0 \leqq E/p \leqq 0{,}20$ Volt/cm·Torr linear, für $E/p > 0{,}20$ ist die v-Kurve gekrümmt, und von etwa 0,40 Volt/cm·Torr bis zum Ende des ausgemessenen Bereiches (0,66) nimmt v mit wachsendem E/p ab. Für Mischung 3 verläuft v linear bis etwa 0,15 Volt/cm·Torr, von da an gekrümmt, und für $E/p > 0{,}27$ sinkt v mit wachsendem E/p.

Durch ähnliche Betrachtungen, wie wir sie bei der Mischung 1 angewandt haben, folgt aus den graphischen Darstellungen der Sättigungskurven unmittelbar: Die Sättigungskurven für 5 ata verlaufen nach Gleichung (5a) (Fig. 8 und 10) im Bereich konstanter Elektronenbeweglichkeit (kleine E/p-Werte) geradlinig, im Bereich starker Feldstärkeabhängigkeit der Elektronenbeweglichkeit gekrümmt (gestrichelt gezeichnet). Für grosse Feldstärken gehen die gekrümmten Sättigungskurven in die Sättigungsgerade für 2 ata über. Bei 2 ata tritt in beiden Gasen innerhalb des untersuchten Feldstärkebereiches vollständige Sättigung auf.

Die Darstellung der Sättigungskurven nach Gleichung (18a) (Fig. 9 und 11) zeigt, dass auch bei den Mischungen 2 und 3 von einem bestimmten v an Abweichungen vom geradlinigen Verlauf auftreten. Für Mischung 2 beträgt dieser v-Wert $\sim 7{,}7$ cm/μsec ($1/v = 0{,}13$ μsec/cm), für Mischung 3 $\sim 8{,}3$ cm/μsec ($1/v = 0{,}12$ μsec/cm); die entsprechenden E/p-Werte sind: für Mischung 2 0,22 Volt/cm·Torr, für Mischung 3 0,20 Volt/cm·Torr. Wie bei Mischung 1 liegen diese Werte in dem Bereich, in welchem die starke negative Krümmung der v-Kurven beginnt. Dass in den Figuren 9 und 11 die Sättigungskurven nicht in einem Punkt enden, wie das in Figur 7 der Fall ist, liegt daran, dass für die Mischungen 2 und 3 v für grosse E/p-Werte nicht konstant wird, sondern wieder abnimmt.

6.3. Einfluss des Ramsauer-Effektes

Wir wollen in diesem Abschnitt noch auf einen interessanten Zusammenhang hinweisen, der sich aus unseren Messresultaten ergibt. Wie wir bereits in den vorhergehenden Abschnitten festgestellt haben, beginnen die Abweichungen zwischen experimentellen und theoretischen Ergebnissen bei allen untersuchten Gasmischungen in einem E/p-Bereich, der unmittelbar vor dem Maximum der v-Kurven, d. h. im Bereich der beginnenden starken negativen Krümmung liegt. Dieser Bereich korreliert nun mit dem Anfang des sogenannten «Ramsauer-Gebietes», d. h. des Gebietes, in dem sich der Ramsauer-Effekt bemerkbar macht.

Der Ramsauer-Effekt macht sich bekanntlich durch ein Minimum im Verlauf der Funktion $\lambda = \lambda(\varepsilon)$ bemerkbar, wobei mit λ die mittlere freie

Weglänge der Elektronen bezeichnet ist. Da für kleine kinetische Energien auch λ klein wird, geht diesem Minimum stets ein Maximum voraus, d. h. es existiert ein bestimmter Energiebereich, in welchem λ mit wachsendem ε abnimmt. Da nun die Wanderungsgeschwindigkeit v der Elektronen λ direkt proportional und der Quadratwurzel aus ε umgekehrt proportional ist[11]), muss in diesem Bereich mit wachsendem ε auch v abnehmen. – Dieser Effekt lässt sich durch das relativ hohe erste Anregungsniveau des Argonatoms erklären. Inelastische Stösse zwischen Elektronen und Argonatomen können nur stattfinden, wenn die Elektronen eine Energie besitzen, die grösser ist als diejenige des ersten angeregten Zustandes des A-Atoms: 11,5 eV. Bei Elektronenenergien unter 11,5 eV finden nur elastische Stösse statt; der Wirkungsquerschnitt für elastische Streuung nimmt mit zunehmender Energie der Elektronen ab, d. h. die mittlere freie Weglänge wird grösser. Im Energiegebiet der angeregten Zustände des A-Atoms steigt der gesamte Wirkungsquerschnitt (σ_S) wieder an, um bei sehr hohen Elektronenenergien wiederum abzunehmen. Zusätze von mehratomigen Gasen wie CO_2 oder CH_4 bewirken eine Verschiebung der Extrema der v-Kurven nach grösseren E/p-Werten: die Elektronen verlieren Energie wegen der niederen Anregungsniveaux des CO_2 (CH_4)-Moleküls, sie erreichen daher erst bei grösseren Feldstärken Energien, die zur Anregung der A-Atome genügen.

Die Maxima und Minima im Verlauf der v-Kurven der verschiedenen $A-CO_2$- bzw. $A-CH_4$-Mischungen lassen sich also auf den Ramsauer-Effekt zurückführen. Da dieser Effekt in reinem CO_2, sowie in reinem CH_4 nicht auftritt, müssen diese Extrema bei Erhöhen des Prozentsatzes der zweiten Komponente der Mischungen immer flacher werden und schliesslich ganz verschwinden. Die von ENGLISH und HANNA[14]) veröffentlichten Kurvenbilder zeigen tatsächlich diese Eigenschaften. – Auf die Korrelation zwischen den «Anomalien der v-Kurven» und dem Verlauf der freien Weglänge der Elektronen im Ramsauer-Gebiet haben übrigens ENGLISH und HANNA auch schon hingewiesen.

7. Arbeit pro Ionenpaar

Zum Schluss seien noch die mit Hilfe der extrapolierten Sättigungsladungen ermittelten Werte der Arbeit pro Ionenpaar für Po-α-Teilchen in den hier untersuchten Gasen angegeben:

Gas	Arbeit pro Ionenpaar in eV
CO_2	$34{,}0 \pm 0{,}3$
$0{,}95\ A + 0{,}05\ CO_2$	$25{,}22 \pm 0{,}11$
$0{,}70\ A + 0{,}30\ CH_4$	$27{,}43 \pm 0{,}10$
$0{,}80\ A + 0{,}20\ CH_4$	$27{,}17 \pm 0{,}12$

Literaturverzeichnis

[1]) W. Haeberli, P. Huber und E. Baldinger, Helv. Phys. Acta *26*, 145 (1953).
[2]) C. Biber, P. Huber und A. Müller, Helv. Phys. Acta *28*, 503 (1955).
[3]) G. Jaffé, Ann. d. Phys. *42*, 303 (1913).
[4]) E. Baldinger, W. Hälg, P. Huber und A. Stebler, Helv. Phys. Acta *19*, 423 (1946).
[5]) H. Bichsel, W. Hälg, P. Huber und A. Stebler, Helv. Phys. Acta *25*, 119 (1952).
[6]) D. Maeder, Helv. Phys. Acta *20*, 139 (1947).
[7]) D. Maeder, P. Huber und A. Stebler, Helv. Phys. Acta *20*, 230 (1947).
[8]) R. H. Healey and J. W. Reed, The Behaviour of Slow Electrons in Gases, Amalg. Wireless Ltd., Australia 1941.
[9]) T. E. Bortner und G. S. Hurst, Phys. Rev. *93*, 1236 (1954).
[10]) E. Baldinger, Vorlesungen über experimentelle Hilfsmittel der Kernphysik, Basel 1955 (nicht publiziert).
[11]) B. Rossi und H. Staub, Ionization Chambers and Counters, Mc Graw Hill Co., New York 1949.
[12]) H. Weber, Die part. Diff.gleichungen der math. Physik, Bd. I, S. 185, Braunschweig 1900.
[13]) L. Colli und U. Facchini, Rev. of Sc. Instr. *23*, 39 (1952).
[14]) W. N. English und G. C. Hanna, Can. Journ. of Phys. *31*, 768 (1953).
[15]) N. E. Bradbury und R. A. Nielsen, Phys. Rev. *49*, 391 (1936).
[16]) R. A. Nielsen, Phys. Rev. *50*, 950 (1936).
[17]) J. A. Hornbeck, Phys. Rev. *83*, 374 (1951).
[18]) L. B. Loeb, Int. Crit. Tables, Vol. VI, 111 (1929).
[19]) N. E. Bradbury, Journ. of Chem. Phys. *2*, 827, 835 (1934).

The Photovoltaic Effect in Striated ZnS Single Crystals

by **Walter J. Merz**
Laboratories RCA Ltd., Zurich, Switzerland

(20. VI. 1958)

Abstract. The photovoltaic effect in ZnS single crystals was studied as a function of wavelength, light intensity and temperature. Voltages of a few hundred volts can be observed if bandgap light is used and if the voltage is measured perpendicular to the striations, that is parallel to the hexagonal [0001] and the cubic [111] axes. These ZnS crystals show a very intimate intergrowth of a cubic and a hexagonal modification which can be seen in the form of striations. Following a suggestion of F. Herman and E. E. Loebner it is proposed that at each transition from cubic to hexagonal symmetry or vice versa a barrier is formed at which the electron-hole pairs, which are created by the light, are separated and give rise to a photovoltage. Since this voltage can not be larger than bandgap it is assumed that the high values can occur only when all the many barriers show the same asymmetry so that the small voltages add up to a sizeable net voltage. A possible mechanism for this is shown in terms of the structure of the cubic and hexagonal ZnS. From this asymmetry of the barrier follows also the polarity of the measured voltage. The part of the crystal which grows last (i. e., point of needle) is always the negative electrode at 3130 Å.

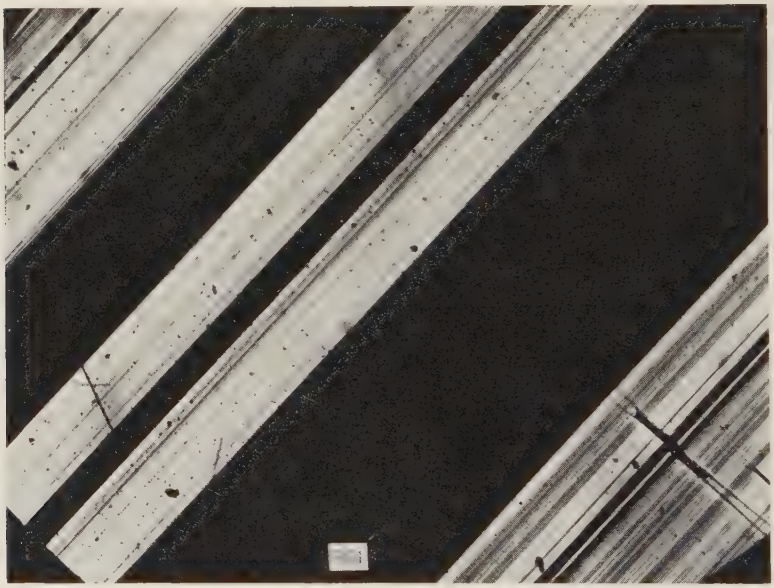
The photovoltage increases first linearly and then logarithmically with light intensity and finally reaches saturation. The voltage increases with decreasing temperature and reaches saturation at a temperature which depends on light intensity. These results can be explained with the proposed model. From the measured curves of photovoltage versus light intensity and temperature the following parameter can be calculated. N, the number of barriers in our needles is about 2000/cm and ΔE, the barrier height is about 0·15 eV.

I. Introduction

It is known that ZnS crystals occur in two crystallographic modifications, in the hexagonal wurtzite structure and in the cubic sphalerite structure. At room temperature the cubic modification is stable whereas above 1020° C the hexagonal one becomes more stable. Although it is not very hard to grow ZnS single crystals it is extremely difficult to obtain crystals which are completely cubic or completely hexagonal. Usually the crystals consist of very many cubic and hexagonal regions. The intimate intergrowth of these two modifications can be seen easily with a polarizing microscope in the form of a very pronounced striation,

a typical picture of which is shown in Figure 1. By X-ray it has been established[1]) that the stacking is such that the hexagonal c-axis[0001] and the cubic [111] axes are aligned and perpendicular to the striations. Needles of ZnS crystals have their axes along the hexagonal [0001] (cubic [111]) axis and the striation can be observed in form of rings around them.

The possible electronic properties of these cubic-hexagonal stacking faults interested a number of people at the RCA Laboratories at Princeton. In particular, F. HERMAN and E. E. LOEBNER proposed that, because of the upset in periodicity, there might exist an extra electric polarization localized near the fault planes, hence a barrier exhibiting a



Picture of a ZnS crystal plate. Striations can be seen in form of dark and light lines.

photovoltage. They speculated that the successive barriers might give additive photovoltages because the same atomic species always appear on the same side of each fault plane. These ideas were spurred by L. PENSAK's discovery[2]) of a very large photovoltaic effect in evaporated CdTe films and by B. GOLDSTEIN's[3]) subsequent study of their electric properties.

Experiments on ZnS single crystals show an extremely large photovoltaic effect (a few hundred volts) when the crystals are illuminated with ultraviolet light and when the voltage is measured perpendicular to

the striation. These preliminary results were reported in a short communication[4]). In the present paper more detailed results about this remarkable effect are given and discussed.

II. Experimental

The experimental set up is extremely simple. A ZnS crystal is exposed to ultraviolet light and the resulting photovoltage is measured with an electrometer. Since the impedance of the samples is of the order of 10^{14} Ω or more one has to be careful that the photovoltage is not partially shortcircuited by the instrument. For this reason a bucking voltage is applied so that the crystal sees a nearly infinite external impedance when the photo voltage is compensated. For the same reason it is necessary to keep the crystals dry; a thin film of water reduces the photovoltage much. Most of our experiments were therefore performed in vacuum. Usually we used gallium electrodes because they make ohmic contacts to ZnS. However, the electrode problem is not very critical since contact barriers of a few tenths of a volt do not affect our measured values of hundred of volts.

III. Experimental Results

ZnS has a forbidden gap with an energy of 3·7 eV which corresponds to about 3400 Å. We have found that a large photovoltaic effect can usually be observed only when the wavelength of the light is smaller than 3400 Å. As expected, it shows that the photovoltage is due to the fundamental absorption of light which is caused by the transfer of electrons from the valence band to the conduction band (electron-hole pair formation). For convenience we usually used in our experiments the strong 3130 Å Hg line. The neighboring 3660 line did usually not give any photovoltage. However, we observed that this line causes partial quenching of the voltage; the full mercury spectrum creates less photovoltage than the much weaker 3130 Å line alone. If a crystal is exposed to the 3130 Å line for a long time it is sometimes also sensitive to longer wavelength whereby the polarity is reversed.

Since a large photovoltaic effect can be observed only when the voltage is measured perpendicular to the striations one suspects that it should be proportional to the number of them. Although it is not easy to count them we found that the voltage increases with the number of striations.

The polarity of the voltage is well defined. We found that without exception the part of the crystal which grew last, for example the point of a needle, shows the negative polarity, whereas the base of the needle shows the positive polarity. The consequences of this observation at 3130 Å are discussed later.

The photovoltage increases first linearly with light intensity and at higher intensities, logarithmically as shown in Figure 2. This behavior is quite normal, as is discussed later. However, the absolute values and the slopes of the curves are unusually high. Voltages of a few hundred volts could be detected. At extremely high light intensities saturation can be reached, especially at low temperatures.

The temperature dependence of the photovoltage for a fixed light intensity of the 3130 Å line is shown in Figure 3. From $-140°$ C to about $+60°$ C we find in this case a linear decrease of the voltage. At higher temperatures the decrease is slower and at about 160° C the photovoltage reaches a value of almost zero. The curved part can be represented by $\ln V \sim 1/T$ as also shown in Figure 3. With a very strong light source it is possible to reach saturation. The stronger the light, the higher the temperature at which saturation can still occur. At temperatures below the saturation temperature the photovoltage is decreasing (Fig. 4). Both the light intensity – and the temperature – dependence of the photovoltage are discussed in the next paragraphs.

IV. A Model for the Bandstructure

Since the high photovoltage increases with the number of striations dnd since it can be observed only when the voltage is measured perpendicular to them it becomes clear that it is due to the structural changes in the crystal. The maximum photovoltage which can be created at any junction or barrier is of the order of the bandgap energy. We thus have to assume that, although each of the very many junctions gives only a small voltage, hundreds of volts can be obtained when many barrier voltages are in series. Following HERMAN and LOEBNER's suggestion we propose that at each transition from cubic to hexagonal structure or vice versa a barrier is formed at which the electron-hole pairs which are created by the light are separated and give rise to a voltage. What kind of a band picture do we have to assume? Since the sample is chemically uniform and since the observed voltages are extremely high we can not assume a series of regular p-n junctions. We have to find a band structure in which there are asymmetric barriers all of which are alike so that the voltages add up. A possible type of band structure is shown in Figure 5. In all the cubic and hexagonal sections the electrons are pulled to the left and the holes to the right, thus at each barrier a voltage is generated. All the barriers show the same shape, and thus the voltages add up. Since the details of the bandstructure are not known Figure 5 should not be taken literally; it demonstrates only the general type of a bandstructure we have to assume.

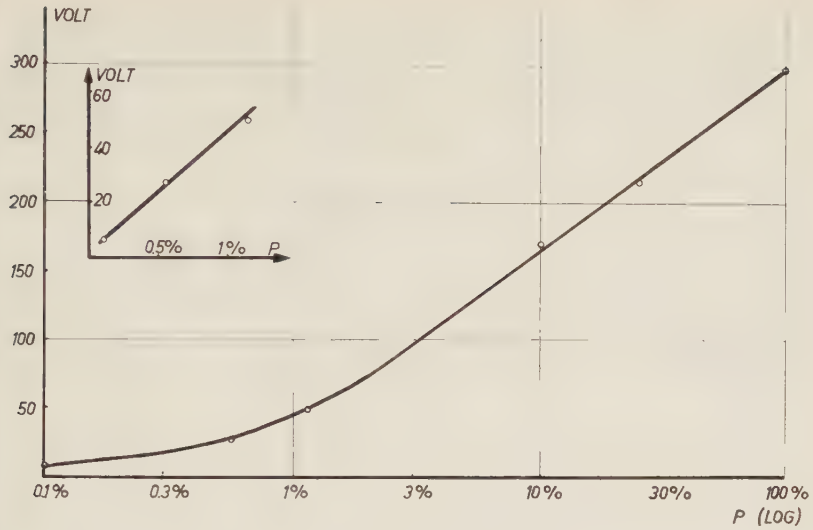


Fig. 2

Photovoltage V versus light intensity P.

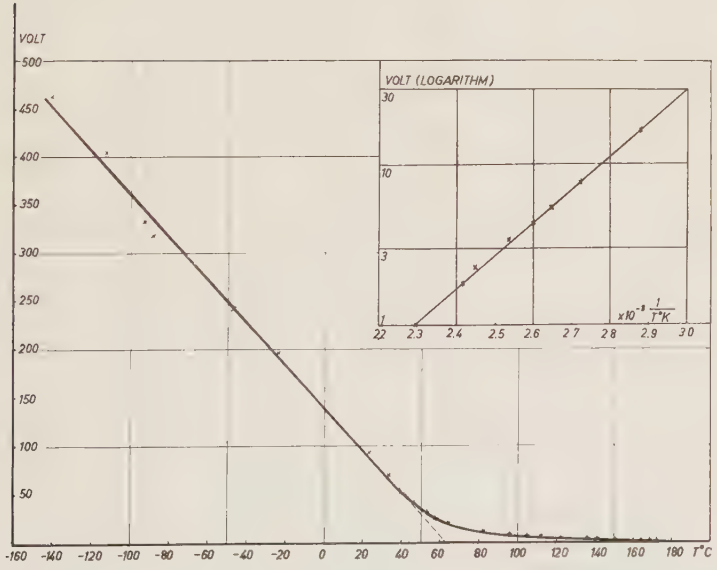


Fig. 3

Photovoltage V versus temperature T.

The main difficulty, of course, is to understand why the barriers have the same asymmetry whether we move from the cubic to the hexagonal structure or vice versa from the hexagonal to the cubic one.

The difference between the cubic and hexagonal structure in ZnS can be seen when one looks along the cubic [111] and the hexagonal [0001]

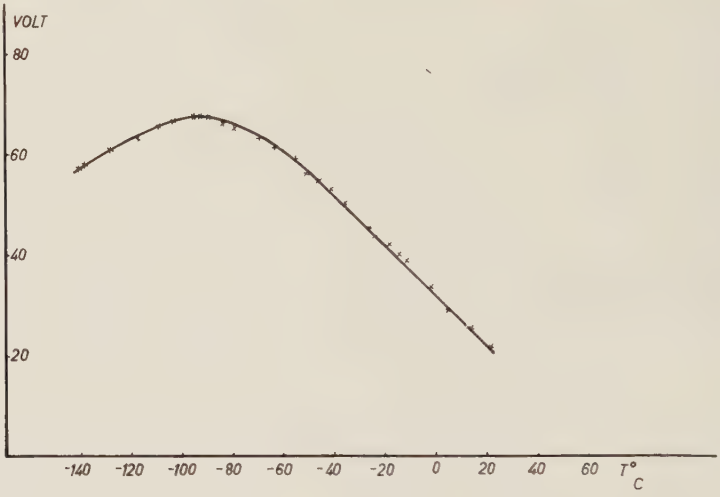


Fig. 4
Saturation of photovoltage versus temperature for high light intensity.

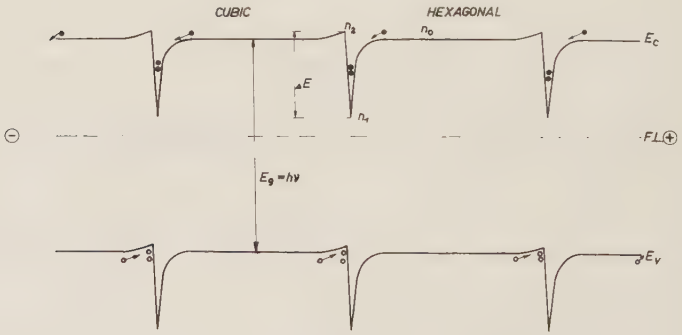


Fig. 5
Proposed bandstructure for cubic-hexagonal ZnS.

axes respectively. As in the case of a cubic and a hexagonal closed packed lattice one finds that in the cubic system the fourth layer coincides with the first one, whereas in the hexagonal system already the third layer coincides with the first one. To go from one structure to the other, one

has to rotate a ZnS tetrahedron around the Zn-S bond along the hexagonal axis by 60° (Fig. 6). This rotation changes the short range periodicity and we assume that this causes a band curvature as shown in Figure 5. It is interesting to note that the bandgaps for cubic and for hexagonal ZnS are the same within a few hundreds of an electron volt[5]). However, by changing the periodicity a band bending is caused which amounts to about a tenth of a volt as we will see later. The surprising fact still remains that we obtain the same sign of voltage regardless of whether we go from cubic to hexagonal symmetry or vice versa. However, the threefold symmetry of the cubic [111] axis and the sixfold symmetry of the hexagonal [0001] axis tells us that it makes no difference whether we turn a ZnS tetrahedron clockwise or counter clockwise

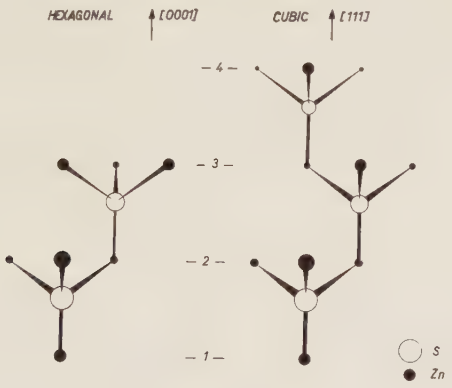


Fig. 6
Crystallographic structure model of cubic and hexagonal ZnS.

aly 60°. Since all the bonds along these axes always go from Zn to S or bways from S to Zn, but never both, we perform the same operation whenever we go from one structure to the other. Thus this might be the key to why the sign is the same and why all the voltages can add up to very high values. This is possible only because the cubic and the hexagonal structures of ZnS can be transformed into each other by the same mechanism.

The polarity of the photovoltage is therefore determined by the sequence of the atoms, that is, whether the bonds along the cubic [111] and hexagonal [0001] axes go from Zn to S or from S to Zn. Since all the crystals show the same polarity (point of needle is always the negative pole) it follows that the crystal growth along this axis can have only one sense. In Figure 7 we show four possible atomic arrangements. In cases

A and C the bonds along the cubic [111] and hexagonal [0001] axes grew from Zn to S in cases B and D from S to Zn. On the other hand, in cases A and B the first bond to the substrate is vertical in cases C and D not.

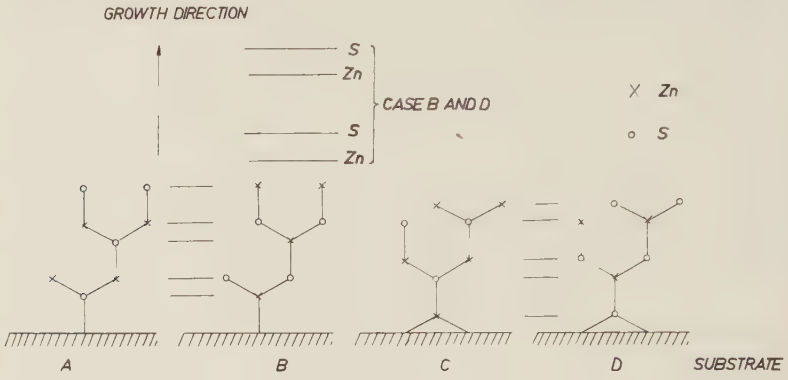


Fig. 7
Four possible growth patterns of ZnS.

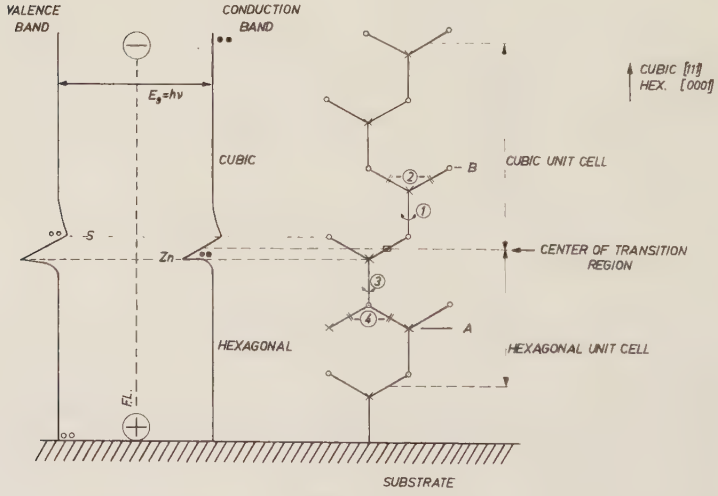


Fig. 8
Crystallographic structure and band structure at a transition from cubic to hexagonal symmetry in ZnS.

X-ray investigations by John White of the Princeton Laboratory[1]) showed that only cases B and D are possible, that is, the bonds along the [111] axis go from S to Zn. This is consistent with the polarity of the measured photovoltage as shown in Figure 8. Coming from the substrate

we turn around bond 1 by 60° in order to change the structure from hexagonal to cubic; bonds 2 are now in a new position. On the other hand, coming from the other side, we turn around bond 3 by 60° in order to make the structure change from cubic to hexagonal and bonds 4 are now in a new position. There is a transition region A to B where both structures overlap. The center of this region is marked by a square. To the left of this diagram the band structure as discussed before is shown. ZnS is partially ionic where Zn are the positive ions and S the negative ions. It thus seems reasonable to identify the valleys in the conduction band with Zn positions and the hills in the valence band with S positions as shown in Figure 8. The figure shows that the vertical bonds go from S to Zn coming from the substrate because the point of the needle is the negative electrode, and because the center of transition is on a diagonal bond going from Zn to S. Hence both X-ray and electrical measurements agree. Whether case B or D is the true one can not be decided with these experiments. In favor of B speaks the negativity of the oxygen layer of the quartz substrate on which the crystals grew, in favor of D speaks the three point initial attachment. Experiments on growing ZnS on different substrates might clear up this question.

V. Photovoltaic Effect

The photovoltaic effect at a metal-semiconductor contact or at a p-n junction is reasonably well understood. The maximum voltage one can obtain is in both cases given by ΔE, the barrier height. The maximum voltage we can expect to obtain from our type of a junction is ΔE, the jump of the band at the barrier (Fig. 5).

The open circuit voltage at either type of a barrier is given by[6])

$$V_0 = \frac{kT}{e} \ln \left(1 + \frac{I_L}{I_0}\right) \tag{1}$$

where I_L is the photocurrent created by light and I_0 is the reverse current in the dark. This equation is obtained by equating the photocurrent and the forward current, due to diffusion of the excess carriers in the presence of the voltage V_0. Equation (1) shows that the open circuit voltage increases with light intensity (I) and decreases with increasing temperature (I_0).

Since the photocurrent is proportional to the light intensity P equation (1) can be written as follows:

$$\frac{I_L}{I_0} \ll 1 \text{ (low light intensity)}: V_0 = \frac{kT}{e} \frac{I_L}{I_0} = \text{const } P \tag{2}$$

$$\frac{I_L}{I_0} \gg 1 \text{ (high light intensivity)}: V_0 = \frac{kT}{e} \ln \frac{I_L}{I_0} = \frac{kT}{e} \ln P + \text{const.} \tag{3}$$

The voltage thus depends first linearly and then logarithmically on light intensity which agrees with our experimental results (Fig. 2). At very high light intensities saturation sets in and equation (1) is not valid anymore.

The reverse current in the dark increases exponentially with temperature which leads to linear decrease of the photovoltage with increasing temperature at high light intensities. This has been observed experimentally (Fig. 3).

Using the model discussed in chapter IV and using the numerical values described in chapter III we get the following results for N, the number of barriers per cm and ΔE, the barrier height.

A direct optical measurement of N by counting the number of lines (striation) with a microscope using polarized light and also reflected light is difficult since many of the lines are very faint. (See Fig. 1.) Furthermore, plates can show very many or only very few striations. However, surprisingly enough we found that in contrast to the plates all our needles showed about the same line density of the order of about 2000/cm. N can also be calculated from equation (3) that is from Figure 2 where the photovoltage of a needle is plotted versus the logarithm of the light intensity. According to equation (3) the slope of the voltage in the logarithmic range should be $kT/e = 1/40$ Volt at room temperature. But, experimentally we observe values of 40–60 Volts depending on the length of the needle. This, of course, is due to the fact that N barriers are put together in series. We found that the slope in the logarithmic range is independent of the absolute light intensity as it should be. Using ZnS needles with a length between 0·7 and 1·2 cm we obtain for N values of 1700–2100/cm which is in remarkable close agreement with the direct optical measurement of $N \simeq 2000$/cm. It is interesting to note that B. Goldstein [3]) obtained very similar results in CdTe films.

The saturation voltage V_{sat} is the product of the number of barriers N times the barrier height ΔE. Depending on the length of the samples we find values for V_{sat} between 63 Volts and 450 Volts. Using the corresponding N values we obtain for ΔE an average value of 0·15 eV (between 0·12 and 0·18 eV).

VI. Summary

The experimental results agree quite well with the band model proposed in section IV, at least in a qualitative way. The light intensity – and temperature – dependence of the photovoltage follows the equations presented in section V. The voltage increases first linearly and then logarithmically with light intensity and reaches saturation at high light level. On the other hand, the voltage decreases first linearly and then exponentially with increasing temperature. At low temperatures saturation

can be observed. Furthermore, the polarity of the voltage can also be explained by the proposed band model. However, it is clear that this model is too simple in order to get good quantitative results. The value for the number of striations in needles comes out reasonable and also the barrier height of 0·15 eV. The small decrease of photovoltage below the saturation temperature might be explained by a change of the barrier height ΔE with temperature which of course could also influence the numerical values at higher temperatures.

Due to the high impedance in the order of $10^{14}\,\Omega$ the power output of the ZnS single crystal photovoltaic cell is less than 10^{-8} watt. A semiconductor with similar type of stacking faults and with the same type of intergrowth of two crystallographic modifications might give a much more efficient photovoltaic cell.

VII. Acknowledgment

In the course of this work I enjoyed the cooperation of a number of people. In particular I am thankful to Drs. F. Herman, M. A. Lampert, E. E. Loebner, D. O. North, and A. Rose of the Princeton laboratories of RCA for many discussions during the initial stages and to Dr. W. Ruppel of this laboratory and Prof. F. Stoeckmann during the final stages of this work. I also would like to thank Drs. J. G. White and S. G. Ellis for their X-ray work and Mr. C. W. Struck for the preparation of the crystals.

References

[1]) J. G. White, RCA Laboratory, Princeton: Personal Communication.
[2]) L. Pensak: Phys. Rev. *109*, 601 (1958).
[3]) B. Goldstein, Phys. Rev. *109*, 601 (1958).
[4]) S. G. Ellis, F. Herman, E. E. Loebner, W. J. Merz, C. W. Struck, and J. G. White, Phys. Rev. *109*, 1860 (1958).
[5]) For example: R. H. Bube, Proc. I.R.E. *43*, 1836 (1955).
[6]) For example: Mott and Gurney, Electronic Processes in Ionic crystals, Oxford Press, 1953.

On Pressure Dependence of Proton Magnetic Resonance Shift

by **B. N. Bhar**
Physics Department, Al-Hikma University of Baghdad, Iraq

(7. V. 1958)

The experimental observation by Ogg[1]) of the displacement of proton magnetic resonance line of water due to change of state—from liquid to vapour phase—as described in this journal under the heading 'High resolution proton magnetic resonance in water and concept of Hydrogen bonding' needs some comment and elucidation in the light of the suggestion previously put forward by us about the pressure dependence of proton 'chemical shift' in nuclear magnetic resonance phenomenon[2]).

In a communication elsewhere[2]) we have developed the idea that in all compounds endowed with the property of molecular association by virtue of hydrogen bonding, the proton resonance in the vapour phase would occur at a higher value of the externally applied magnetic field than that in the liquid phase. This statement was made considering the liquid to be a 'highly compressed gas' in the light of the continuity of state of matter. The experimental observation by Ogg of the shift of proton resonance line from liquid and vapour state of water, with the proton resonance in the vapour state falling at a higher value of the externally applied magnetic field, seems to be just in agreement with our suggestion.

Ogg has stated that the displacement of proton resonance line in vapourised water from liquid water was greater compared to the case of gaseous and liquid ammonia. It is stated that in the former case the shift was 150 cycles per second and in the latter case it was 50 cycles per second at 30 megacycles nuclear magnetic resonance spectrometer. But in such cases of quantitative comparison of shifts the measurement in gaseous phase should be made with equivalent amounts of the substances under the same pressure and temperature in the light of our proposition of pressure dependence of proton magnetic resonance shift.

Literature

[1]) R. A. Ogg, Helv. Phys. Acta, *30*, 89 (1957).
[2]) B. N. Bhar, J. Chem. Phys, *23*, 1972 (1955).

Kritische Feldstärke supraleitender Hohlzylinder im transversalen Magnetfeld

von **R. Jaggi, J. Müller** und **R. Sommerhalder**
Laboratorium für Festkörperphysik ETH

(17. VII. 1958)

I. Theorie

Im Zusammenhang mit der Messung der Eindringtiefe an supraleitenden Hohlkörpern[1]) haben wir die Lösung der Londonschen Gleichungen für einen unendlich langen supraleitenden Hohlzylinder (innerer Radius R_i, äusserer Radius R_a) im homogenen transversalen Magnetfeld H_0 berechnet. Führt man Zylinderkoordinaten (r, δ, z) ein und legt das Magnetfeld H_0 in die Richtung der positiven x-Achse ($\delta = 0$), so ergibt sich für den Feldverlauf

$$r \geqslant R_a: \qquad H_r = H_0 \left(1 - \frac{a}{r^2}\right) \cos \delta$$

$$H_\delta = -H_0 \left(1 + \frac{a}{r^2}\right) \sin \delta$$

$$r \leqslant R_i: \qquad H_r = H_i \cos \delta$$

$$H_\delta = -H_i \sin \delta$$

$$R_i \leqslant r \leqslant R_a: \quad H_r = -\frac{1}{\beta^2 r} \left[ci \boldsymbol{J}_1 (i\beta r) + d \boldsymbol{H}_1^1 (i\beta r)\right] \cos \delta$$

$$H_\delta = -\frac{c}{\beta} \left[\boldsymbol{J}_0 (i\beta r) - \frac{\boldsymbol{J}_1 (i\beta r)}{i\beta r}\right] \sin \delta$$

$$+ \frac{d}{\beta} \left[i \boldsymbol{H}_0^1 (i\beta r) - \frac{\boldsymbol{H}_1^1 (i\beta r)}{\beta r}\right] \sin \delta$$

wobei $\beta = 1/\lambda$ die reziproke Eindringtiefe, J_0, J_1, H_0^1, H_1^1 die Besselsche bzw. Hankelsche Zylinderfunktion 1. Art und 0. bzw. 1. Ordnung bedeuten. a, c, d und H_i sind Konstanten, die sich aus den Randbedingungen ergeben. Für makroskopische Hohlzylinder ($\beta R_a \gg \beta R_i \gg 1$) wird unabhängig von der Wandstärke

$$a \approx R_a^2 \quad \text{und} \quad H_i \approx 0.$$

Der Feldverlauf innerhalb und ausserhalb des Hohlzylinders ist demnach

praktisch derselbe wie beim Vollzylinder und das kritische äussere Feld, bei dem die Supraleitung zerstört wird, unabhängig von der Wandstärke des Hohlzylinders $H_0 = H_c/2$.

Auf Grund thermodynamischer Betrachtungen, die sich auf den unendlich langen Hohlzylinder beziehen und die den Zwischenzustand vernachlässigen, finden SERIN, GITTLEMAN und LYNTON[2]), dass bei genügend dünnwandigen Hohlzylindern ($R_i/R_a > 1/\sqrt{2}$) die freie Energie des normalleitenden Zustandes diejenige des supraleitenden Zustandes bereits bei elektrodynamisch unterkritischen Feldstärken $H^+ < H_c/2$ unterschreiten soll. Sie interpretieren die Diskrepanz zwischen den thermodynamisch und elektrodynamisch gefundenen kritischen Feldstärken H^+ und $H_c/2$ in der Weise, dass sie den supraleitenden Zustand des Hohlzylinders im elektrodynamisch unterkritischen, thermodynamisch jedoch bereits überkritischen Transversalfeld als metastabil ansehen. Der Hohlzylinder soll beliebig lange im metastabilen Zustand verharren können, wenn das Magnetfeld an der Oberfläche des Körpers lokal nirgends H_c überschreitet. Andernfalls sollen solche Stellen (z. B. die Enden des Hohlzylinders im Magnetfeld) als Keime wirken können, die die Umwandlung vom supraleitenden in den stabilen, normalleitenden Zustand (bzw. den Zwischenzustand) herbeiführen.

Wir sind der Ansicht, dass die thermodynamische und die elektrodynamische Behandlung des Problems das gleiche kritische Feld liefern, dass also kein metastabiler Zustand existiert. Es ist nämlich zu beachten, dass die thermodynamischen Variabeln – Temperatur T und angelegtes Magnetfeld H_0 – den Zustand des Systems, welches aus dem Hohlkörper und seinem Inneren besteht, nicht eindeutig festlegen: Wird der supraleitende Zustand durch Abkühlung im angelegten Magnetfeld erzeugt*), so friert der Hohlkörper beim Phasenübergang einen beträchtlichen Teil des magnetischen Flusses im Inneren ein, während bei Abkühlung ohne äusseres Magnetfeld das Innere feldfrei bleibt.

Die Konsequenzen für die thermodynamische Rechnung lassen sich bereits am einfacheren Fall des Hohlzylinders im longitudinalen Magnetfeld überblicken, wo kein Zwischenzustand auftritt. Im normalleitenden Zustand ist die Gibbssche freie Energie G_n des Systems pro Längeneinheit

$$G_n = g_n \cdot \pi\,(R_a^2 - R_i^2) - \frac{\mu_0}{2} \cdot H_0^2 \cdot \pi R_a^2 \qquad (1)$$

wo g_n den temperaturabhängigen Anteil der freien Energie der Materie pro Volumeneinheit bedeutet.

*) Genau genommen handelt es sich um einen Zwischenzustand, der aber rechnerisch nicht erfasst wird.

Im supraleitenden Zustand ist die freie Energie G_s des Systems pro Längeneinheit nur definiert, wenn als Nebenbedingung die magnetische Feldstärke im Innern des Hohlkörpers festgelegt ist[3]). Der isotherme Phasenübergang verläuft nur dann reversibel (ohne Entwicklung Joulescher Wärme als Folge von Induktionsströmen), wenn man vom supraleitenden Zustand des Hohlzylinders ausgeht, der bereits das Feld H_c im Loch enthält. Hierfür wird die Gibbssche freie Energie

$$G_s = g_s \cdot \pi \, (R_a^2 - R_i^2) - \frac{\mu_0}{2} \cdot H_c^2 \cdot \pi \, R_i^2 \qquad (2)$$

wo g_s die temperaturabhängige freie Energie der Materie pro Volumeneinheit bedeutet. Mit

$$g_n - g_s = \frac{\mu_0}{2} \cdot H_c^2 \qquad (3)$$

findet man dann aus (1) und (2)

$$G_n - G_s = \frac{\mu_0}{2} \cdot \pi \, R_a^2 \, (H_c^2 - H_0^2)$$

d. h. die kritische Feldstärke ist unabhängig von der Wandstärke des Hohlzylinders.

Den Enden des Hohlzylinders, die sich im Magnetfeld befinden, kommt mehr als die Bedeutung von «Keimen» zu, denn das kritische Feld hängt wesentlich von der speziellen Form der Enden ab. Mittels passend gewählter Randformen ist es denn auch gelungen, sowohl grössere als auch kleinere kritische Feldstärken zu messen als die von Serin, Gittleman und Lynton[2]) bestimmten.

II. Experimente

Wir haben die kritischen Felder chemisch reiner Sn-Hohlzylinder (Länge 50 mm, $R_i = 4{,}0$ mm, $R_a = 4{,}4$ mm) mit verschieden geformten Enden im Transversalfeld bei zwei Temperaturen gemessen. Das äussere Feld wurde ein- und ausgeschaltet und der ins Innere des Hohlzylinders eindringende Fluss mit Hilfe einer Induktionsspule über einen ballistischen Verstärker gemessen.

Die Randbedingungen des unendlich langen Hohlzylinders lassen sich im Experiment realisieren durch Anbringen halbkugelförmiger Abschlusskappen. Das kritische Feld wurde zu $H_0 = H_c/2$ bestimmt (Tab. I). Die Messungen von Babiskin[4]) an einer Hohlkugel lassen dies auch erwarten. Damit die Kappen wirksam sind, müssen sie dicht aufgelötet sein. Vorversuche mit mechanisch aufgepressten und überdrehten Kappen ergaben innerhalb der Fehlergrenzen gleiche kritische Felder wie ohne Kappe.

Tabelle I

Probe	T °K	H_0 Oersted	$H_c/2$ Oersted[5])
mit Abschlusskappen	1,92	110	109
	2,89	57	55
ohne Kappen, Enden plan abgedreht	1,92	68	109
	2,87	34	55

Hohlzylinder mit plan abgedrehten Enden, die sich im Magnetfeld befanden, zeigten kritische Felder, die mit den nach Serin, Gittleman und Lynton[2]) interpolierten Werten zusammenfallen. Durch Herstellen konisch zugespitzter Ränder kann man sie wesentlich unterbieten. Weil dadurch gleichzeitig das Verhältnis von Hohlzylinderlänge zu Hohlzylinderradius verkleinert wird, haben wir im Anschluss an diese Messungen die Enden erneut plan abgedreht und das kritische Feld kontrolliert. Die Resultate sind in Tabelle II zusammengestellt.

Tabelle II

Probenenden	Totale Probenlänge mm	T °K	H_0 Oersted
plan abgedreht	50	1,92	68
		2,93	33
1 Ende plan, 1 Ende konisch, Konuslänge 3 mm	45	1,93	48
		2,93	22
plan	41	1,92	58
		2,94	29

Herrn Prof. Dr. G. Busch danken wir für die Unterstützung dieser Arbeit, ebenso dem Schweiz. Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung für finanzielle Hilfe.

Literatur

[1]) R. Jaggi und R. Sommerhalder, Helv. Phys. Acta *31*, 292 (1958).
[2]) B. Serin, J. Gittleman, E. A. Lynton, Phys. Rev. *92*, 566 (1953).
[3]) M. von Laue, Theorie der Supraleitung, Springerverlag 2. Aufl. (1949), p. 76.
[4]) J. Babiskin, Phys. Rev. *85*, 104 (1952).
[5]) D. Shoenberg, Superconductivity, Cambridge Univ. Press 2nd Ed. 1952.

© 1958 by Schweizerische Physikalische Gesellschaft
Société Suisse de Physique. – Società Fisica Svizzera
Nachdruck verboten – Tous droits réservés – Printed in Switzerland

Production directe de paires d'électrons par des électrons de grande énergie

par **R. Weill**
Laboratoire de Recherches Nucléaires, E.P.U.L., Lausanne

(3 VII 1958)

Summary. The methods of energy measurement of electron pairs discussed in previous publications[10)42)] have been improved: The limits of application of direct angle measurements have been recalculated; the three dimensional model of track formation, which accounts for the variation of ionisation on the initial track of electron pairs, has been perfected. These results, joined to our previous study of spurious scattering[10)] confirm the energy measurements we made for the determination of the mean free path λ of direct electron pairs production.

We have found that the KAPLON and KOSHIBA's factor f_i used for the calculation of the number of pseudotridents are too large. This can introduce an overestimation on λ up to four times at 100 GeV.

If the disagreement between BHABHA and RACAH's theoretical values and the experimental determination of λ seem to be established, the values deduced from STUECKELBERG's remark agree quite well with the experiment.

We calculated also the influence of 'anomalous' trident production on shower development.

Introduction

La mesure du libre parcours moyen λ de production directe de paires d'électrons par les électrons a déjà fait l'objet d'un grand nombre de publications[1-10)]. Ce travail constitue une suite des études que nous avons publiées précédemment.

Nous y avons repris l'étude de la mesure directe de l'angle des paires d'électrons (§ I, 1). Nous avons poursuivi l'élaboration du modèle tridimensionnel de formation des traces initiales des paires en y introduisant le schéma de formation de l'image latente de DEMERS, modifié par DELLACORTE (II). Nous avons également étudié l'influence de la méthode approchée du calcul des faux tridents donnée par BLOCK et KING, sur les valeurs expérimentales de λ publiées par les divers auteurs. Nos résultats enfin ont été confrontés avec de nouvelles valeurs théoriques déduites des travaux de STUECKELBERG.

Comme précédemment, nous n'avons considéré que les cascades électrophotoniques où l'énergie mise en jeu est supérieure à 20 GeV, en suivant les traces sur des longueurs allant jusqu'à 4 cm. Celles-ci ont été groupées comme précédemment en 3 classes (2 à 8, 8 à 32 et 32 à 150 GeV). La largeur de chaque classe représente à peu près la perte d'énergie moyenne d'un électron ayant l'énergie supérieure de cette classe sur un parcours de 4 cm dans l'émulsion.

I. Mesure de l'énergie des électrons

L'énergie des électrons producteurs de tridents a été mesurée par diffusion multiple relative chaque fois que l'on disposait, sur une longueur suffisante, de traces distantes de 1 à 20 μm. Nous avions montré[13]), en accord avec d'autres auteurs[14])[15]) que dans ces conditions, la diffusion parasite due aux dislocations (spurious scattering) était éliminée.

Un bon nombre des traces étudiées proviennent de paires d'électrons. Dans le cas de paires de grande énergie, les longueurs de trajectoires disponibles sont souvent insuffisantes pour permettre une mesure de diffusion multiple: d'une part les traces des deux électrons sont fréquemment indiscernables sur plusieurs mm, d'autre part le développement des gerbes qu'ils engendrent rend ambigüe l'identification de leurs trajectoires après quelques cm. Dans ce cas l'estimation de l'énergie d'une paire E peut être effectuée à partir de la mesure de son angle d'ouverture ω dont la valeur la plus probable a été donnée par Borsellino:

$$\omega_a = \frac{4\, m_e c^2}{E}\, \varphi\,(a) \qquad (1)$$

l'énergie d'un des électrons $= E \cdot a$. (A l'équipartition $a = 0{,}5$ et $\varphi(a) = 1$) en pratique $\varphi\,(a) \cong 1$.

La relation (1), vérifiée expérimentalement jusqu'à 10 GeV[17])[18])[19])[20])[46]) permet la détermination de l'énergie moyenne $E/2$ de chacun des deux électrons de la paire, si l'on dispose de leur angle d'ouverture ω.

1. Mesure directe de l'angle des paires d'électrons

Considérons une paire d'électrons d'ouverture angulaire à l'origine donnée ω_e; soit ω l'angle projeté dans le plan de l'émulsion; soit Y_0, $Y_1 \ldots$ $Y_i \ldots$ (en μm) les séparations projetées des deux traces aux points x_0, $x_1 \ldots x_n$, d'abscisse X_0, $X_1, \ldots X_i \ldots X_n$ (S est la distance entre deux points consécutifs, mesurée en centaines de μm, comme X)

$$Y_0 = \omega \cdot 10^2\, S\, N + \left(\beta_0' + \beta_0''\right) 10^2\, S\, N + y_0' + y_0''$$

$$Y_1 = \omega \cdot 10^2\, S(N+1) + \left(\beta_0' + \beta_0''\right) 10^2\, S(N+1) + \left(\beta_1' + \beta_1''\right) 10^2\, S + y_1' + y_1''$$

. . . . . .

$$Y_i = \omega \cdot 10^2\, S(N+i) + \left(\beta_0' + \beta_0''\right) 10^2\, S(N+i) + i\left(\beta_1' + \beta_1''\right) 10^2\, S + \ldots$$
$$\ldots + \left(\beta_i' + \beta_i''\right) 10^2\, S + y_i' + y_i''$$
$$\text{où: } N = \frac{X_0}{S}$$

$\beta_i'(\beta_i'')$ est { pour $i = 0$: l'angle entre la corde $x_0' 0 (x_0'' 0)$ et la tangente à la trajectoire correspondante en 0;
pour $i \neq 0$: l'angle entre les cordes $x_i', x_{i-1}'(x_i'', x_{i-1}'')$ et $x_{i-1}', x_{i-2}'(x_{i-1}'', x_{i-2}'')$;

le déplacement angulaire $\beta_i'(\beta_i'')$ considéré ici est dû exclusivement à la diffusion multiple coulombienne. $y_i'(y_i'')$ est le déplacement latéral de la trace résultant de la dispersion des grains autour de la trajectoire (bruit de fond).

$\beta_i'(\beta_i'')$ et $y_i'(y_i'')$ étant des variables aléatoires indépendantes de moyenne nulle, distribuées selon une loi de GAUSS, chacun des termes $Y_i/10^2\, S\,(N+i) = \omega + \Omega_i$ est également une variable gaussienne, *de moyenne* ω et de variance:

$$\sum_i^2 = \sum_{i\,d}^2 + \sum_{i\,g}^2 \qquad (2)$$

où $\sum_{i\,d}^2$ est la contribution de la diffusion multiple coulombienne et $\sum_{i\,g}^2$ celle de la dispersion des grains d'argent autour des trajectoires.

$$\sum_{i\,d}^2 = S\left(K \frac{\pi}{180} \sqrt{\frac{\pi}{2}}\right)^2 \cdot \frac{1}{2} \cdot \left[\frac{N(N+i)^2 + \frac{i(i+1)(2i+1)}{6}}{(N+i)^2}\right]\left(\frac{1}{E'^2} + \frac{1}{E''^2}\right)$$

$$k = 26 \cdot \frac{\text{MeV} \cdot \text{degré}}{\sqrt{100\,\mu}}$$

est la constante de diffusion multiple utilisée dans les mesures sagittales.

$$\sum_{i\,g}^2 = \left(\frac{0{,}17}{\sqrt{6}} \sqrt{\frac{\pi}{2}}\right)^2$$

0,17 μm est la diffusion parasite due à la dispersion des grains dans les mesures sagittales.

Nous prendrons comme valeurs mesurées de l'angle d'ouverture ω celles données par

$$\omega = \frac{Y_i}{10^2\, S(N+i)}$$

en posant $\Omega_i = 0$, cette valeur étant affectée d'une incertitude $\pm \sum_i$ (formule (2)) intervalle de confiance à 68% sur Ω_i. Le résultat n'a évidemment une signification que si $\omega > \sum_i$.

Le fait que dans l'expression donnant les Y_i, les facteurs multipliant ω et $\beta'_0 + \beta''_0$ soient les mêmes, montre qu'il n'existe pas de combinaison linéaire des Y_i permettant d'obtenir une variance sur ω plus petite que celle correspondant à la mesure au point X_0. Contrairement à ce qui a été publié précédemment*), il y a donc intérêt à effectuer les mesures d'angles d'ouverture le plus *près possible de l'origine des paires*. Il sera cependant nécessaire au point choisi de répéter deux ou trois fois les déterminations de Y_i à quelques μm d'intervalle, afin d'éliminer le bruit de fond des grains.

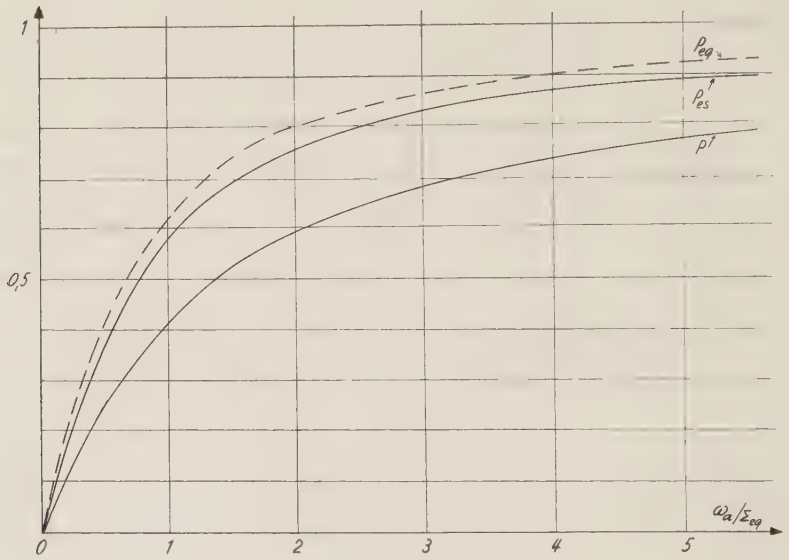


Fig. 1

Représentation de la probabilité pour que la contribution de la diffusion multiple soit inférieure à celle provenant de l'ouverture initiale en fonction de $\omega_a/\Sigma_{eq}.P_{eq}$ (cas de l'équipartition) valable pour toutes valeurs de E. P (cas général) valable pour $E > 300$ MeV. P_{es} est applicable lorsqu'on mesure l'angle dans l'espace.

2. *Limites d'application de cette méthode*

Le calcul détaillé donnant la probabilité P_{eq} pour que la contribution du bruit de fond soit inférieure à celle provenant de l'ouverture initiale d'une paire, lors de la mesure de son écartement projeté, a déjà été publié[13]). Les résultats sont valables pour le cas de l'équipartition de

*) Nous remercions Mademoiselle Di Corato qui nous a signalé une erreur dans le calcul de Σ_d^z.

l'énergie du photon aux deux électrons (fig. 2 de[13]). On peut les généraliser en tenant compte de la distribution de probabilité $f(a)$ de E' et E'', donnée par HEITLER[21]).

$$P = \int_0^1 f(a)\, P_{eq}\, da \tag{3}$$

avec $E' = E\, a \qquad E'' = E\,(1 - a)$

Le calcul numérique a été conduit en faisant usage de la représentation graphique de $f(a)$ donnée pour $E = \infty$ (fig. XII, 11, p. 178 de [22])). Les erreurs de calculs pouvant résulter des méthodes d'intégration mises en

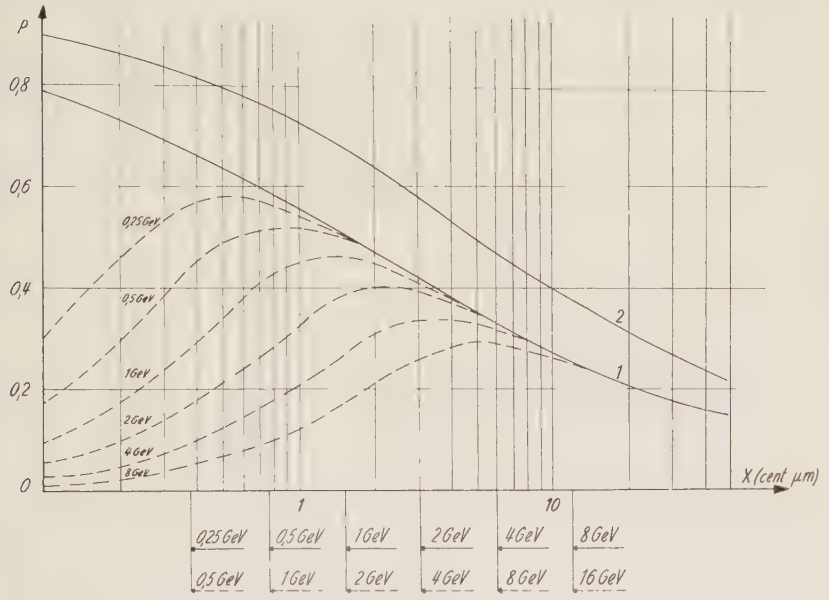


Fig. 2

Probabilité P pour que la contribution de la diffusion multiple soit inférieure à celle provenant de l'ouverture initiale, en fonction de la distance au sommet (X en cent. de μm) à laquelle on mesure la séparation des trajectoires. 1: mesure de l'angle projeté. (Traits interrompus: sans élimination du bruit de fond des grains.) Les flèches en traits continus donnent pour diverses énergies les distances au sommet auxquelles on peut en moyenne commencer les mesures (pointillés mesures de séparation à partir du profil de la trace). 2: mesure de l'angle dans l'espace. (Variation de l'ionisation) (P_{es}).

œuvre n'excèdent pas 5%. A la figure 1, P valable en fait pour $E >$ 300 MeV, à la précision des calculs, est représenté en fonction de ω_a/Σ_{eq}; on a également reporté P_{eq} pour E quelconque. (Pour $E < 300$ MeV, P se rapproche de P_{eq}.)

On en déduit le graphique donnant P en fonction de la distance au sommet (X en centaines de μm) à laquelle on mesure la séparation Y (fig. 2). Les courbes en traits interrompus donnent pour diverses énergies les valeurs de P dans le cas où on n'élimine pas le bruit de fond des grains.

L'écartement minimum mesurable est de 0,3 μm environ auquel correspond une abscisse moyenne $X_{\min} \cong 0{,}3/\omega_a \cdot 10^{2}$ (centaines de μm). Les flèches en traits continus sur la figure donnent ces abscisses pour les énergies considérées.

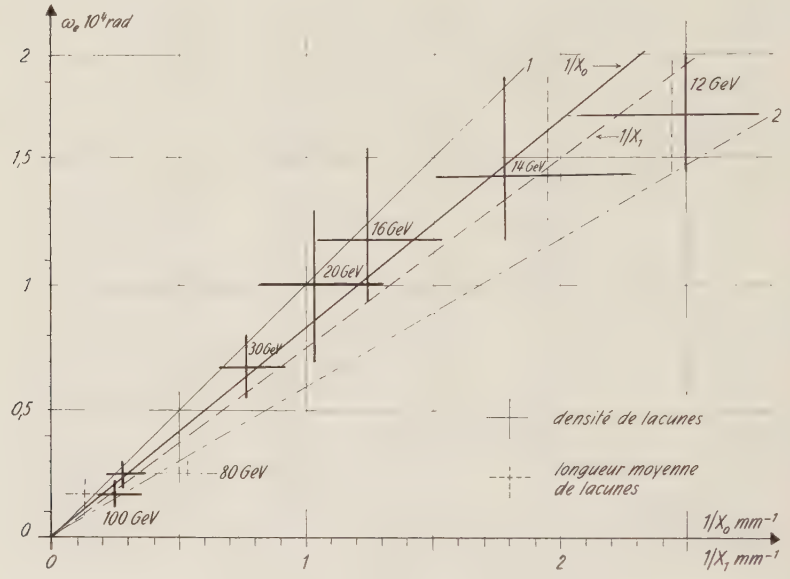


Fig. 3

Variation de $1/X_0$ mm^{-1} (traits continus) et $1/X_1$ mm^{-1} (traits interrompus) en fonction de ω_e. Les chiffres relatifs à chaque point donnent l'énergie des paires utilisées. (1 et 2: modèle tridimensionnel.)

La mesure du profil de la trace permet d'atteindre des séparations d'environ 0,15 μm. L'abscisse minimum est alors $X_{\min} = 0{,}15/\omega_a \cdot 10^{-2}$ (en centaines de μm). Elle est indiquée par les flèches pointillées pour les énergies données précédemment.

L'examen de la figure 2 (qui remplace les figures incorrectes 3 et 4 de [13])) montre qu'avec la deuxième méthode la contribution de la diffusion multiple est inférieure à celle provenant de l'écartement initial dans plus de 50% des cas, pour des paires d'énergie inférieure à 2 GeV.

Nous considérerons cette valeur comme la limite d'application de la méthode.

Remarquons que selon Di Corato [23]*), il conviendrait de prendre dans la relation de Borsellino (1) $\varphi(a) = 1{,}5$. Dans ce cas les valeurs de x données en abscisse à la figure 2 seraient à multiplier par 2, 3 et la limite d'application de la méthode serait alors reportée à 5 GeV.

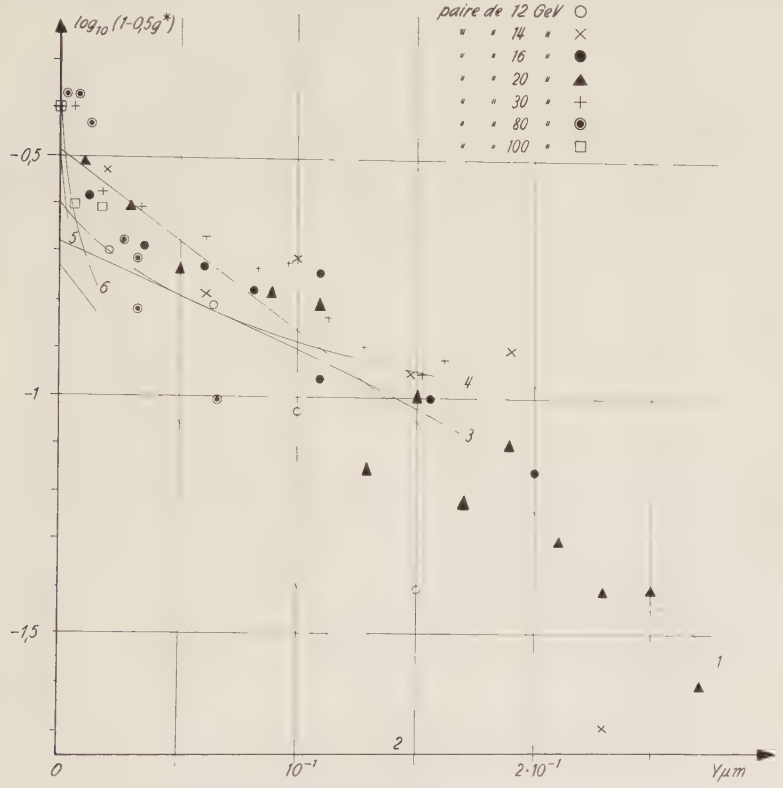


Fig. 4

Densité de lacunes relative au plateau g^* en fonction de l'écartement $Y\mu$m des trajectoires. 1: droite des moindres carrés. Valeurs calculées sur la base du modèle tridimensionnel de formation des traces: $2: \delta = 0$; $3: \delta = 0{,}04$; $4: \delta = 0{,}12$ μm; 5: effet dipôle selon Čudakov; 6: effet dipôle selon Yekutielli.

3. *Détermination de l'angle d'ouverture dans l'espace d'une paire d'électrons à partir de l'ionisation*

Mesure relative d'angles

Au voisinage de l'origine, une paire d'électron de grande énergie se présente sous l'aspect d'une trace unique, tant que la séparation des deux

*) Note ajoutée aux épreuves: Les résultats préliminaires relatifs à b matérialisation de photons d'énergie de 100 à 1000 MeV obtenus par E. Hart à l'aide du synchrotron de Cornell, permettent de déduire une valeur expérimentale $\overline{\varphi(a)} = 1{,}4$ en bon accord avec celle $\overline{\varphi(a)} = 1{,}5$ tirée des travaux de Di Corato (E. Hart, communication privée).

trajectoires ne dépasse pas le rayon d'un grain d'argent de l'émulsion développée. Ainsi que l'ont signalé divers auteurs[24)25)] à la suite de PERKINS[26)] la densité de lacunes sur cette trace croît à partir du sommet de la paire pour n'atteindre deux fois la valeur au plateau qu'après un parcours de plusieurs centaines de microns.

La variation de structure de la trace ne dépend que de la variation de l'écartement des trajectoires. Deux paires présenteront même densité et même longueur moyenne de lacunes aux points d'égales séparations.

Utilisant des cellules de 200 à 300 μm, nous avons mesuré la densité et la longueur de lacunes relatives au plateau g^* et G^* sur les traces initiales de 7 paires d'électrons dont les énergies supérieures à 10 GeV ont été déterminées par diffusion multiple relative; g^* peut être représenté en fonction de l'abscisse X par une relation du type:

$$g^* = 2\left[1 - a \exp\left(-\frac{X}{X_0}\right)\right]$$

pour G^* on a:

$$G^* = \frac{1}{2}\left(1 + b \exp\left(-\frac{X}{X_1}\right)\right)$$

A la figure 3, les paramètres $1/X_0$ et $1/X_1$, déterminés par l'analyse des moindres carrés pour chacune des paires étudiées, ont été représentés en fonction de l'angle ω_a de BORSELLINO. Mais les droites tracées sur le graphique, résultant d'une moyenne, donnent en fait les variations de $1/X_0$ et $1/X_1$ avec l'angle ω_e dans l'espace.

Nous avons calculé la probabilité pour que la mesure ainsi effectuée ait une signification P_{es} ($\omega_e > |\Omega|$) à l'aide de la relation (4)

$$P_{es} = \frac{2}{\sqrt{2\pi}\sqrt{2}\Sigma}\int_{a=0}^{1} f(a)\,da \int_{Z=0}^{\infty} \exp\left(-\frac{Z^2}{2\cdot 2\Sigma^2}\right) \int_{\frac{\omega}{\omega_a}=\frac{Z}{\omega_a}}^{\infty} B(\omega/\omega_a)\,d\omega/\omega_a \quad (4)$$

$B(\omega/\omega_a)$ est la distribution de l'angle d'ouverture dans l'espace de la paire rapportée à sa valeur la plus probable selon BORSELLINO.

La variance considérée ici est $2\,\Sigma_{eq}^2$ où Σ_{eq} est donné par la formule (2) avec $\Sigma_g = 0$. P_{es} a été reporté en fonction de la distance au sommet X, à la figure 2 (courbe 2). (En fonction de ω_a/Σ_{eq} à la figure 1.)

La probabilité pour que la contribution de la diffusion multiple soit inférieure à celle provenant de l'ouverture initiale est supérieure à 50% pour X inférieur à 5 (12 si l'on prend $\bar{\varphi}(a) = 1{,}5$).

La méthode proposée est donc applicable à toutes les paires d'énergie supérieure à environ 5 GeV.

La figure 4 donne le $\log_{10}(1 - 0{,}5\ g^*)$ et la figure 5 le $\log_{10}(G^* - 0{,}5)$ en fonction de l'écartement Y_a le plus probable des trajectoires dans l'espace.

$$Y_a = \omega_a\, 10^2 \cdot X$$

Une partie des mesures de G^* a été effectuée au moyen d'un appareil semi-automatique (lacunomètre) construit pour cet usage[27]).

II. Interprétation de la variation de la structure des traces à l'origine des paires d'électrons

Introduction

Nous avons dès le début de ces recherches[13]) indiqué que la variation de densité de lacunes à l'origine des paires devait être due à un effet géométrique: soit $\bar{\pi}$ la probabilité moyenne pour un grain traversé par une particule au plateau d'être rendu développable. Cette probabilité sera

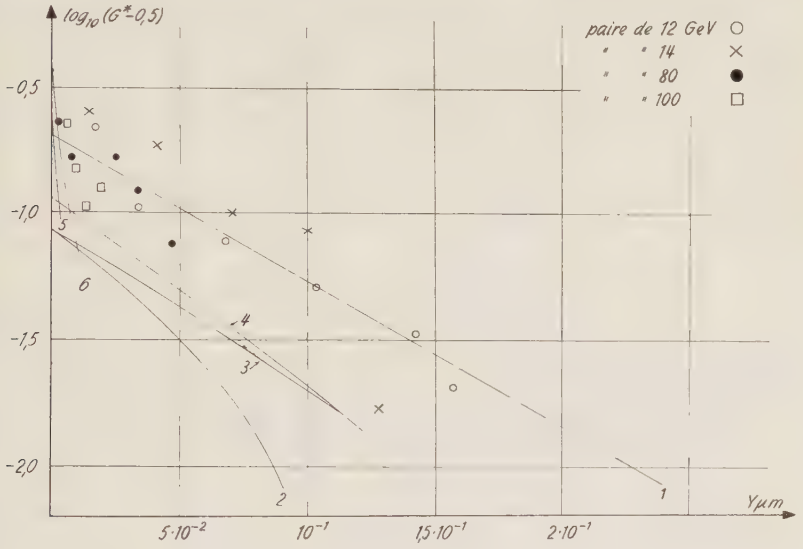


Fig. 5

Longueur moyenne de lacunes relative au plateau G^* en fonction de l'écartement Y µm des trajectoires. 1: droite des moindres carrés. Valeurs calculées sur la base du modèle tridimensionnel de formation des traces: courbe 2: $\delta = 0$; courbe 3: $\delta = 0{,}04$; courbe 4: $\delta = 0{,}12$ µm; courbe 5: effet dipôle selon Čudakov; courbe 6: effet dipôle selon Yekutielli.

$2\bar{\pi} - \bar{\pi}^2 < 2\bar{\pi}$, lorsque ce grain sera traversé par deux particules indépendantes au plateau, séparées par une distance Y petite vis-à-vis du diamètre du grain d'AgBr. La densité de grains relative au plateau sera donc inférieure à 2 à l'origine; il en sera de même de la densité de lacunes. Une étude plus poussée de cet effet nécessite un modèle de formation des traces dans les émulsions nucléaires. La théorie de Dellacorte et collaborateurs[28])[29]) permet, comme nous l'avons montré[13]) de rendre compte d'une valeur de $g^* \simeq 1{,}60$, lorsque $Y = 0$. Mais les modèles

existants (principalement celui de DELLACORTE et celui d'O'CEALLAIGH[30]), tous unidimensionnels, ne permettent pas d'étendre les calculs aux cas $Y \neq 0$.

Nous avons alors été amenés à établir un modèle tridimensionnel simple (généralisation de celui d'O'CEALLAIGH) applicable au cas des paires d'électrons, dont la description a été donnée dans[10]) et[42]): On supposait les grains cubiques de côté $d = 2/3\ d_0$, d_0 étant le diamètre d'un grain d'AgBr. de l'émulsion réelle. On admettait que les centres de ces grains étaient distribués au hasard dans des plans perpendiculaires aux trajectoires, leur répartition étant caractérisée par une loi de POISSON tronquée; soit $\bar{\pi}$ la probabilité moyenne pour un grain d'un plan d'être rendu développable et q sa probabilité de toucher la trajectoire considérée; posons $P_{1d} = \bar{\pi}.\ q$. Appelons G la longueur moyenne de lacunes et g leur densité. On obtient:

$$(\text{Pour } P_{1d} < 0{,}2) \qquad 1/G = a\ P_{1d} \qquad (G \text{ est mesuré en unités } d_0)$$

$$g = \frac{P_{1d}}{\delta + d_0} \quad \exp.\ [-f \cdot a \cdot P_{1d}] \tag{5}$$

$\delta = 0{,}04\ \mu\text{m}$ $\qquad a = 1{,}00$
$\delta = 0{,}12\ \mu\text{m}$ $\qquad a = 0{,}95$

f dépend du degré de développement, le diamètre D d'un grain d'argent étant égal à $d_0\ (1 + f)$.

δ est une grandeur caractéristique de notre modèle, l'espace moyen entre deux plans supports de centre des grains étant $\delta + d_0$.

1. Application à l'étude de la formation de la trace à l'origine des paires d'électrons

Le problème dans le cas d'une paire d'électrons se traite formellement de la même façon; soient deux trajectoires parallèles à l'axe x, dans le plan xy, séparées par une distance Y. Il suffit de remplacer P_{1d} dans l'expression (5) par P_{2d}, probabilité pour qu'un plan traversé par deux trajectoires présente un ou deux grains développables. Soient A et B l'intersection des deux trajectoires avec un plan (les deux trajectoires sont parallèles à deux faces opposées de chaque grain). P_{2d} se calcule en considérant toutes les positions possibles de A et B pour lesquelles un ou deux grains sont rendus développables. (Ce calcul constitue un développement de celui indiqué dans[10]): (pour $Y < d$).

a) A est dans un grain et le rend développable, alors que B est en dehors de tous grains ou vice versa.

b) A et B sont dans le même grain qui est rendu développable soit par A soit par B ou simultanément par A et B.

c) A et B sont chacun dans un grain différent, rendant l'un ou l'autre ou les deux développables.

Les parties géométriques de ces probabilités sont:

$$\text{a)} \quad P_1 = \frac{\lambda}{\lambda + d} [1 - \exp(-Y/\lambda)]$$

$$\text{b)} \quad P_2 = \frac{d - Y}{\lambda + d}$$

$$\text{c)} \quad P_3 = \frac{1}{\lambda + d} [Y + \lambda \{\exp[-Y/\lambda] - 1\}]$$

λ est l'espace moyen entre bords de grains (de côté d) suivant une direction parallèle à y où à z; λ dépend de δ. (Voir [10]), où $\lambda = \varrho$).

Pour tenir compte de la probabilité pour un grain touché d'être rendu développable, nous ferons appel au schéma de formation de l'image latente élaboré par DEMERS[34]).

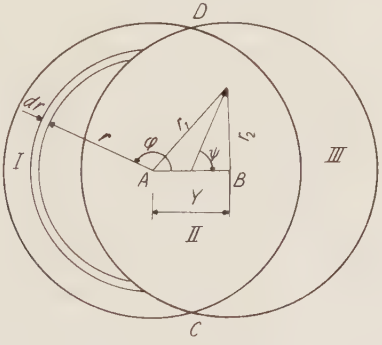


Fig. 6

Si l est le parcours de la particule dans un grain d'AgBr. la probabilité que ce grain soit impressionné est:

$$\pi(l) = 1 - \exp[-\beta \eta l] \tag{6}$$

$$\text{avec } \beta = \frac{\alpha}{\varepsilon} dE/dR \qquad \text{selon [29])}$$

dE/dR = perte d'énergie unitaire de la particule.
ε = potentiel d'ionisation moyen du cristal d'AgBr.
α = constante dépendant de l'émulsion.
η = facteur de recombinaison dépendant de dE/dx calculé par DELLACORTE[29]).

Déterminons les probabilités moyennes de développement correspondant aux trois conditions géométriques définies sous a), b), c). Soit Y l'écartement des deux trajectoires A et B (fig. 6). Soient deux cercles de diamètres d_0, de centres A et B.

1. Les grains dont les centres sont situés dans le croissant I ou III ne sont touchés que par une des trajectoires. Leur probabilité moyenne d'être impressionnés est:

$$f_1(Y) = \frac{2}{S_I} \int_{R-Y}^{R} r\,dr \left\{ \pi - \operatorname{Arccos} \frac{r^2 + Y^2 - R^2}{2rY} \right\} \pi \left(2\sqrt{R^2 - r^2} \right)$$

S_I = surface de la zone I.

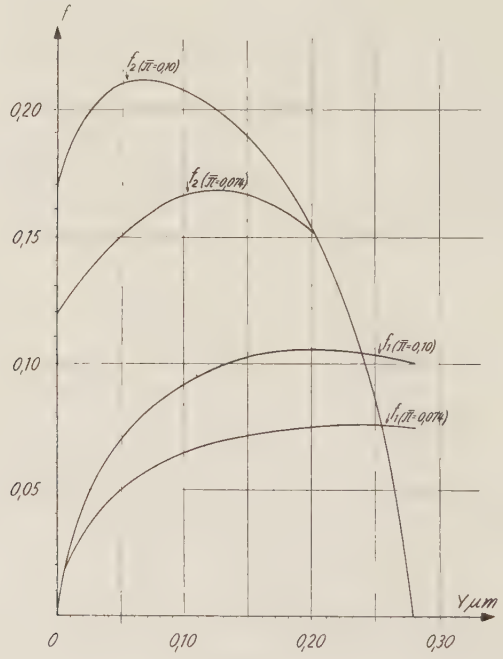


Fig. 7

2. Les grains dont les centres sont situés dans le domaine II touchent simultanément A et B. La probabilité pour un grain de centre en ϱ, ψ d'être impressionné est:

$$\pi(l_1)\,[1 - \pi(l_2)] + \pi(l_2)\,[1 - \pi(l_1)] + \pi(l_1)\,\pi(l_2) =$$

$$= 1 - \exp\,[-\beta\,\eta(l_1 + l_2)] = \pi(l_1 + l_2)$$

avec: $l_1 = 2\sqrt{R^2 - Y^2/4 - \varrho^2 - \varrho\,Y\cos\psi}$

$$l_2 = 2\sqrt{R^2 - Y^2/4 - \varrho^2 + \varrho\,Y\cos\psi}$$

La probabilité moyenne pour un grain dont le centre est sur la zone II d'être impressionné sera:

$$f_2(Y) = \frac{1}{S_{II}} \int\int_{II} \varrho \, d\varrho \, d\psi \, \pi(l_1 + l_2)$$

S_{II} = surface de la zone II.

A la figure 7, f_1 et f_2 sont représentés en fonction de Y pour $\bar{\pi} = 0{,}074$ et $\bar{\pi} = 0{,}10$.
Alors:

$$P_{2d} = \frac{2\lambda(1 - \exp[-Y/\lambda])\, f_1 + (d - Y)\, f_2 + [Y - \lambda(1 - \exp[-Y/\lambda])]\,(2 f_1 - f_1^2)}{\lambda + d} \qquad (7)$$

Dans les émulsions G5 utilisées pour ce travail $G = 4$ μm. La relation (5) permet d'en déduire les grandeurs suivantes, correspondant aux 3 valeurs de δ choisies:

δ μm	q	P_{1d}	π
0	0,70	0,070	0,100
0,04	0,80	0,070	0,088
0,12	1,00	0,074	0,074

(La relation (6) donne les valeurs de β η.) On peut alors construire les courbes représentant la variation de G^* et g^* en fonction de Y (courbes 2, 3, 4 des figures 4 et 5). A la figure 3 on a également reporté les variations de $1/X_0$ et $1/X_1$ moyens (droites 1 et 2) que l'on peut déduire des valeurs calculées de g^* et G^*.

Les grandeurs ainsi obtenues s'accordent qualitativement avec les résultats expérimentaux. On voit en particulier qu'avec notre modèle g^* tend bien vers ~ 2 pour des écartements de l'ordre de 2 à $3 \cdot 10^{-1}$ μm; G^* tend vers $\sim 0{,}45$ pour ces mêmes valeurs.

La variation de l'ionisation sur la trace initiale des paires, mesurée par des cellules d'environ 200 μm, peut donc être interprétée comme provenant de la structure géométrique du détecteur utilisé.

Ainsi que nous l'avons déjà montré[10)42)], un phénomène du type dipôle (proposé par PERKINS) ne permet de rendre compte de la variation de structure de la trace initiale des paires que pour des tronçons limités à 100 ou 200 μm du sommet, c'est-à-dire pour des distances 10 fois plus courtes que celles considérées.

Il en résulte que l'application inconsidérée des théories de l'Effet dipôle[36)37)38)] peut conduire à des surestimations sur les énergies des paires allant jusqu'à 100 fois.

Remarquons enfin que les valeurs de $\bar{\pi}$ que nous avons obtenues, supérieures à celles que l'on déduit de la théorie de Dellacorte ($\bar{\pi} = 0{,}045$), sont en bon accord avec celles données par Dodd et Waller[35]) d'une part ($\bar{\pi}$ compris entre 0,11 et 0,13), et Baillard[31]) d'autre part ($\bar{\pi} = 0{,}09$).

III. Mesure du libre parcours moyen de production directe de paires

1. Détermination du nombre de faux tridents

Rappelons qu'une paire créée directement par l'électron primaire (vrai trident) apparaît comme une paire dont le sommet est situé sur la trace de cet électron. Ce phénomène est indiscernable de la production parasite de faux tridents, résultant de la matérialisation de photons de freinage à une distance de la trajectoire inférieure au diamètre d'un grain d'argent.

Soit alors N_i le nombre de tridents observés sur un tronçon de longueur l_i, pour une classe d'énergie donnée. Le principe du maximum de vraisemblance nous indique que la valeur de λ à adopter comme résultat des mesures est:

$$\lambda = \frac{\sum_i l_i}{\sum_i (N_i - \nu_{fi})}$$

ν_{fi} étant le nombre moyen de faux tridents sur le tronçon de longueur l_i.

Jusqu'à maintenant les différents expérimentateurs utilisaient la méthode proposée par Block et al.[39]): Ils mesuraient le nombre de tridents N_i et le nombre total de paires n_{vi} (tridents compris) observées sur la trajectoire et dans son voisinage. La connaissance du facteur $f_i = \nu_{fi}/n_i$, leur permettait d'en déduire:

$$N_i \cdot \nu_{fi} - \frac{N_i - n_{vi} \cdot f_i}{1 - f_i} = \text{nombre de vrais tridents}$$

(n_i est le nombre total de photons de rayonnement convertis sur la longueur l_i).

Les facteurs f_i ont été calculés par Kaplon et Koshiba[19])[40]) après Block et al.[39]). Remarquons que cette méthode peut conduire dans le cas d'électrons de grande énergie à des valeurs erronées de λ, une certaine fraction non négligeable des paires dénombrées provenant d'électrons secondaires, ce qui entraîne à une surestimation de n_{vi}.

Les travaux de Rossi[41]) (fig. 5. 13. 2) sur l'évolution statistique des cascades, nous permettent de calculer que l'utilisation de la méthode de Block et al. amène à compter environ 1,3 fois trop de faux tridents. Cette erreur sans influence notable jusqu'à 10 GeV, entraîne par contre à une surestimation de λ d'environ 1,7 fois à 100 GeV.

Nous avons éliminé cet inconvénient par une méthode plus homogène en calculant sur la seule base des sections efficaces de radiation et de conversion données par BETHE-HEITLER, le nombre de faux tridents

$$\nu_{fi} = n_i \cdot f_i$$

pour des énergies de l'électron allant jusqu'à 100 GeV et des longueurs de trajectoires comprises entre 0 et une longueur de rayonnement [10)42)]; nous avons également calculé les facteurs f_i pour les mêmes conditions; ceux-ci sont inférieurs aux valeurs données par KAPLON et KOSHIBA. Nous avons déjà indiqué [10)42)] les raisons qui nous font considérer nos résultats comme plus corrects que ceux publiés par ces derniers auteurs. Cette nouvelle erreur s'ajoute évidemment à l'erreur de méthode déjà signalée.

Il en résulte que l'ensemble des expérimentateurs ayant utilisés les facteurs f_i de KAPLON et KOSHIBA *ont surestimé jusqu'à 3 à 4 fois les valeurs mesurées de* λ, *pour des énergies comprises entre 30 et 100 GeV, et jusqu'à 1,8 fois à 10 GeV.*

2. Résultats

La figure 8 réunit les principales valeurs publiées de λ (rectangles blancs) ainsi que nos résultats expérimentaux (rectangles hachurés). Les courbes théoriques ont été établies sur la base des sections efficaces avec (courbe 2) et sans effet d'écran (courbe 1), calculées par BLOCK et al.[7]) d'après BHABHA et RACAH[11)12)]. La courbe 3 s'obtient à partir de la relation (n° 2) donnée par STUECKELBERG[45)] (sans effet d'écran). 4 représente la droite des moindres carrés pour l'ensemble des résultats expérimentaux. Les coefficients a et γ relatifs à la droite 5, d'équation $\lambda = a\, E^{\gamma}$ (λ en longueur de rayonnement, E en GeV) ont été déterminés pour nos mesures sur la base du principe du maximum de vraisemblance, tenant compte de la perte moyenne d'énergie par Bremsstrahlung pour chaque tronçon. $a = 17$; $\gamma = -0{,}7$.

On admet actuellement que le méson μ doit être considéré comme un électron lourd[20)44)]. C'est pourquoi nous avons également reporté sur ce graphique les valeurs de λ relatives à la production directe de paires d'électrons par des mésons μ de 60 et 120 GeV, données par M. AVAN[20)]. (Les abscisses 0,5 et 0,6 GeV correspondent aux énergies d'électrons de même vitesse.)

3. Discussion

L'examen de la figure 8 montre que le désaccord entre l'ensemble des résultats expérimentaux et les courbes calculées d'après RACAH et BHABHA s'accentue au fur et à mesure que l'énergie croît. (La différence est significative pour nos résultats, ainsi que nous l'indiquions dans le

tableau I de [10]).) Par contre les valeurs obtenues par Piron sur la base de l'article de Stueckelberg[45]) sont en bon accord avec nos résultats et ceux des autres expérimentateurs, ceux obtenus par Naugle à 70 GeV exceptés. Dans ce dernier cas, la différence peut provenir comme on l'a vu d'une surestimation d'environ 3 fois sur λ inhérente à la méthode de correction utilisée pour les faux tridents.

On peut donc admettre que les mesures de λ, dont la détermination nécessite l'utilisation des sections efficaces de rayonnement et de conversion de Bethe-Heitler, ne rendent pas compte des résultats théoriques déduits des travaux de Bhabha et Racah au-dessus de 1 GeV, mais semblent justifier les arguments avancés par Stueckelberg.

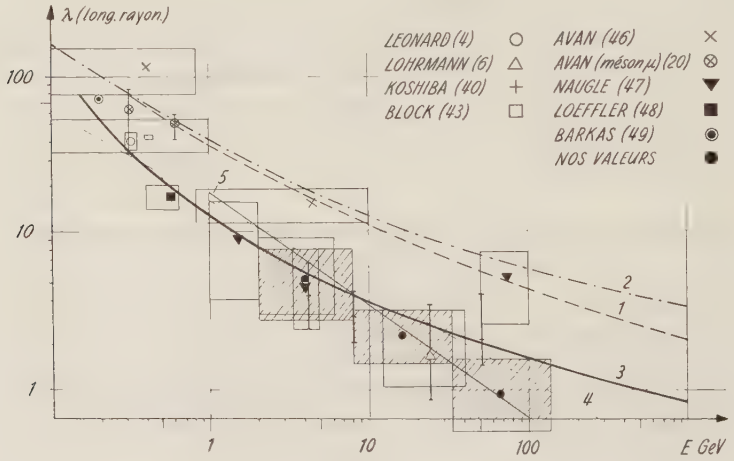


Fig. 8

Libre parcours moyen λ (en unités X_0) de création de paires d'électrons par des électrons. Théorie de Bhabha et Racah: 1: sans effet d'écran; 2: Effet d'écran total; 3: théorie de Stueckelberg; 4: droite des moindres carrés pour l'ensemble des résultats expérimentaux; 5: forme exponentielle $\lambda = a\,E^{\gamma}$ (λ en unités X_0, E en GeV), ajustée à nos résultats, sur la base du principe du maximum de vraisemblance; $a = 17$; $\gamma = -0{,}7$.

IV. Influence de la production de vrais tridents sur l'évolution des cascades électrophotoniques

Les diverses études effectuées jusqu'à maintenant ne tiennent pas compte de ce mode de production de paires d'électrons. Nous avons essayé d'estimer son importance en calculant le facteur C par lequel il faut multiplier les résultats de Rossi (approximation B) pour tenir compte de l'influence des vrais tridents sur le développement des gerbes engendrées par un électron.

Nous considérons 3 énergies du primaire (40, 60 et 100 GeV) et nous admettons que la production de tridents a lieu en moyenne de la façon suivante:

40 GeV: 1 vrai trident est produit après 0,5 longueur de rayonnement.

60 GeV: 1 vrai trident est produit à 0,29 longueur de rayonnement et un demi trident apparaît à 1,8 longueur de rayonnement.

100 GeV: 1 vrai trident apparaît à 0,16 longueur de rayonnement et un second à 1,38 longueur de rayonnement.

Ces valeurs se calculent à partir de la relation exponentielle $\lambda = a E^{\gamma}$, qui tient compte de la perte d'énergie par Bremsstrahlung de l'électron primaire. Nous admettons d'autre part, sur la base de nos observations

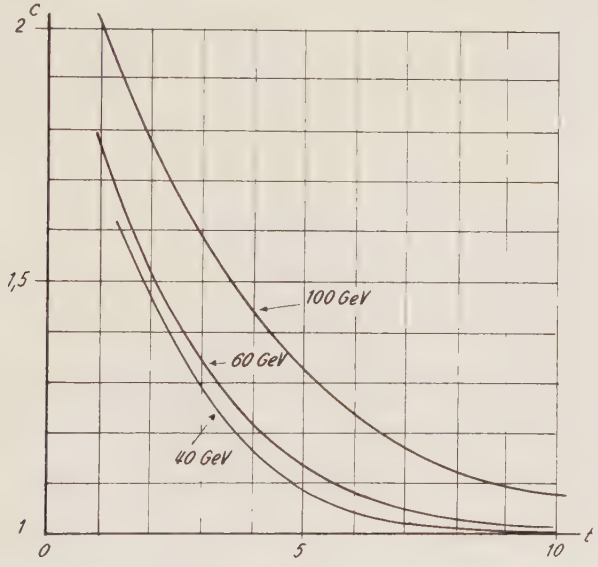


Fig. 9

Facteur C (en fonction de t) par lequel il faut multiplier le nombre d'électrons d'une cascade (calculé par Rossi), pour tenir compte de la production de vrais tridents; en paramètre énergie de l'électron primaire.

et celles de Block et al.[43]), que chaque trident ainsi créé a le dixième de l'énergie de l'électron initial en ce point. On ajoute alors à la cascade produite par l'électron primaire selon Rossi, celle résultant des deux électrons de chaque trident, en admettant l'équipartition de l'énergie pour la paire ainsi créée. (Nous avons fait usage du graphique 5.13.2 de Rossi[41]). C est donné à la figure 9 en fonction de la distance t (longueur de rayonnement) et pour les 3 énergies indiquées.

*

Ces courbes sont valables dans le cas de cascades produites par des photons d'énergies doubles de celles indiquées, à condition de déplacer l'origine de 9/7 vers la gauche (parcours moyen du photon avant sa matérialisation).

On constate que l'influence de la production de vrais tridents, grande entre une et 4 longueurs de rayonnement, disparaît pratiquement pour t égal à environ 6 à 8, c'est-à-dire un peu avant le développement maximum de chaque gerbe.

Les tables et graphiques relatifs à l'évolution statistique des cascades seront donc utilisables, à condition d'effectuer les observations à plus de *cinq longueurs de rayonnement* de l'origine jusqu'à 80 GeV et à plus de 8 X_0 pour 100 GeV; il y aura toujours intérêt à se placer à l'endroit du maximum de développement prévu par la théorie. Ces conclusions sont en désaccord avec celles préliminaires de GARDNER[56]) qui ne tient pas compte de la variation de λ due au Bremsstrahlung le long d'une trajectoire.

Conclusion

Les méthodes de mesure d'énergie que nous avons étudiées montrent que le désaccord entre nos résultats expérimentaux et les valeurs théoriques de λ données par BHABHA et RACAH n'est pas dû à une sous-estimation systématique des énergies des électrons primaires, ainsi que l'avançaient NAUGLE et FREIER.

Nos travaux montrent au contraire qu'un tel accord (obtenu par quelques auteurs) peut résulter d'une surestimation de λ liée à la méthode d'élimination des faux tridents utilisée, et d'une surestimation systématique des énergies des électrons primaires provenant d'une interprétation erronée de la variation de la trace initiale des paires d'électrons.

Remarquons que selon KAPLON et KOSHIBA[19]) il serait nécessaire de diminuer de 1,5 fois les longueurs de rayonnement calculées par BETHE-HEITLER pour amener les résultats de RACAH à coïncider avec les valeurs expérimentales. Or, les mesures de longueurs de rayonnement disponibles actuellement au-dessus de 100 MeV montrent que celles-ci sont environ 1,1 fois plus grandes que les valeurs asymptotiques prévues[22])[50]). Il en va de même pour les libres parcours moyens de matérialisation de photons de plus de 1 GeV[51])[52]). Les travaux théoriques effectués après LANDAU indiquent même que ce facteur devrait encore croître avec l'énergie, rendant les photons et électrons beaucoup plus «pénétrants» qu'on ne l'admettait jusqu'à maintenant[53])[54])[55]).

Le désaccord avec les théories de RACAH et BHABHA semble donc établi dans le cas de primaires de nature électronique.

Au contraire les valeurs déduites de la publication préliminaire de STUECKELBERG, valables uniquement pour les électrons, rendent bien compte de l'ensemble des résultats expérimentaux connus actuellement.

Remarquons que les valeurs de λ relatives à la production directe de paires d'électrons par les mésons μ, mesurées par AVAN[20]) sont elles compatibles avec la théorie déduite de BHABHA.

Nous avons enfin montré que la production de tridents est sans influence sur le développement des cascades électrophotoniques (dans le domaine d'énergie considéré) pour autant que l'on se place au voisinage du maximum de développement de ces gerbes.

J'exprime ma vive gratitude à Monsieur le Professeur CH. HAENNY pour ses encouragements et l'intérêt qu'il a porté à mon travail. Je remercie mes collègues MM. M. GAILLOUD, PH. ROSSELET et C. PIRON de l'aide qu'ils m'ont fournie tant dans les mesures que dans les discussions. L'équipe de dépouillement du laboratoire a participé activement à ces travaux. Ma reconnaissance va également au Fonds National Suisse de la Recherche Scientifique pour son aide financière.

Bibliographie

1) W. H. BARKAS, R. W. DEUTSCH, F. C. GILBERT et C. E. VIOLET, Physical Review *86*, 59 (1952).
2) M. AVAN et L. AVAN, Compt. rend. Acad. Sc. Paris *241*, 1284 (1955).
3) M. F. KAPLON et M. KOSHIBA, Physical Review *97*, 193 (1955).
4) S. L. LEONARD, Bull. Am. Phys. Soc. *1*, 167 (1956).
5) J. E. NAUGLE et P. S. FREIER, Physical Review *92*, 1086 (1953).
6) E. LOHRMANN, Nuovo Cimento *2*, 1029 (1955).
7) M.M. BLOCK, D. T. KING et W. W. WADA, Physical Review *96*, 1627 (1954).
8) A. DEBENEDETTI, C. M. GARELLI, L. TALLONE et M. VIGONE, Nuovo Cimento *4*, 1151 (1956).
9) F. J. LOEFFLER, Physical Review *108*, 1058 (1957).
10) R. WEILL, M. GAILLOUD et PH. ROSSELET, Nuovo Cimento *6*, 1430 (1957).
11) H. J. BHABHA, Proceeding of the Royal Society *A 152*, 559 (1935).
12) G. RACAH, Nuovo Cimento *14*, 93 (1937).
13) R. WEILL, M. GAILLOUD et PH. ROSSELET, Nuovo Cimento *6*, 413 (1957).
14) A. DEBENEDETTI, C. M. GARELLI, L. TALLONE et M. VIGONE, Nuovo Cimento *4*, 1142 (1956).
15) E. LOHRMANN, Nuovo Cimento *5*, 1074 (1957).
16) A. BORSELLINO, Physical Review *89*, 1023 (1953).
17) G. BARONI, A. BORSELLINO, L. SCARSI et G. VANDERHAEGHE, Nuovo Cimento *10*, 1653 (1953).
18) K. HINTERMANN, Physical Review *93*, 898 (1954).
19) M. KOSHIBA et M. F. KAPLON, Physical Review *100*, 327 (1955).
20) M. AVAN, Thèse.
21) W. HEITLER, The Quantum Theory of Radiation. Clarendon Press 1954.
22) A. BERTHELOT, Rayonnement de particules atomiques électrons et photons. Masson & Cie, Paris 1956.

[23]) M. Di Corato, Communication privée.
[24]) R. Weill, M. Gailloud et Ph. Rosselet, Helv. Phys. Acta *29*, 437 (1956).
[25]) W. Wolter et M. Miesowicz, Nuovo Cimento *4*, 648 (1956).
[26]) D. H. Perkins, Philosophical Magazine *46*, 1146 (1955).
[27]) R. Weill, C. Joseph, M. Gailloud et Ph. Rosselet, Sous presse aux Helv. Phys. Acta.
[28]) M. Dellacorte, M. Ramat et L. Ronchi, Jr., Nuovo Cimento *10*, 509 (1953).
[29]) M. Dellacorte, M. Ramat et L. Ronchi, Jr., Nuovo Cimento *10*, 958 (1953).
[30]) C. O'ceallaigh, C. R. Congrès de Bagnère, p. 71, 1953; Congrès de Padoue, suppl.; Nuovo Cimento, p. 412, 1954.
[31]) J. P. Baillard, Communication privée.
[32]) J. H. Webb, Physical Review *74*, 511 (1948).
[33]) G. Fatzer, R. Weill, M. Gailloud et Ch. Haenny, C. R. 1er Colloque International de Photographie Corpusculaire, Strasbourg 1957; G. Fatzer, Thèse.
[34]) P. Demers, Canadian Journal of Research *A 25*, 223 (1947).
[35]) E. C. Dodd et C. Waller, Photographic sensitivity. Butterworth Scientific Publication, p. 266 (1951).
[36]) A. E. Cudakov, Comptes rendus de l'Académie des Sciences d'URSS *19*, 651 (1955).
[37]) G. Yekutielli, Nuovo Cimento *5*, 1381 (1957).
[38]) I. Mito et H. Ezawa, Progress of Theoretical Physics *18*, 437 (1957).
[39]) M. N. Block et D. T. King, Physical Review *95*, 171 (1954).
[40]) M. F. Kaplon et M. Koshiba, Physical Review *97*, 193 (1955).
[41]) B. Rossi, High-Energy particles. «Prentice Hall» inc. 1952.
[42]) R. Weill, Thèse.
[43]) M. N. Block, D. T. King et W. W. Wada, Physical Review *96*, 1627 (1954).
[44]) H. L. Anderson et G. M. G. Lattès, Nuovo Cimento *6*, 1356 (1957).
[45]) E. C. G. Stueckelberg, Helv. Phys. Acta *8*, 324 (1935).
[46]) M. Avan et L. Avan, Comptes rendus de l'Académie des Sciences, Paris *241*, 1284 (1955).
[47]) J. E. Naugle et P. S. Freier, Physical Review *92*, 1086 (1953).
[48]) F. J. Loeffler, Bulletin of the American Physical Society *1*, 350 (1956).
[49]) W. H. Barkas, R. W. Deutsch, F. C. Gilbert et C. E. Violet, Physical Review *86*, 59 (1952).
[50]) A. G. Ekspong, Arkiv for Fysik *9*, 546 (1955).
[51]) J. M. Brabant, W. Robert, W. Kenney et R. W. Wallace, Physical Review *107*, 604 (1957).
[52]) K. Pinkau, Nuovo Cimento *3*, 1156 (1956).
[53]) L. Landau et J. Pomeranchuk, Comptes rendus de l'Académie des Sciences d'URSS *92*, N° 3 (1953); *92*, 735 (1952).
[54]) F. Dyson, Proceedings Sixthn annual Rochester conference, 0, IX–29 (1956).
[55]) A. B. Migdal, Physical Review *103*, 1811 (1956).
[56]) J. W. Gardner, Nuovo Cimento *7*, 14 (1958).

Theory of the Scattering Operator II
Multichannel Scattering*)

by **J. M. Jauch****)
CERN, Theoretical Study Division, Geneva

(10. VIII. 58)

Abstract. The mathematical theory of the scattering operator is developed for the general scattering systems involving an arbitrary number of channels. It includes as a special case the theory for 'simple scattering systems' given in an earlier paper. The scattering system is defined as a quantum mechanical system which satisfies certain asymptotic and completeness conditions given in Section 4. The existence of the S-operator as well as its unitary property is then a rigorous mathematical consequence of this property. A crucial step in these deductions is the orthogonality theorem for the left projections of the wave operators which is proved in Section 5. In the last Section 7, we discuss the various ways of introducing the 'in' and 'out'-operators and their relation to the S-operator.

1. Introduction

In a recent paper[1]) the author has developed the theory of scattering on a mathematically rigorous foundation for the so-called 'simple scattering systems'. This paper is an extension of this work to the case of multichannel scattering. The basic philosophy adopted in this paper is much the same as in the previous one. Only mathematically well defined concepts, symbols and operations are employed. All steps are mathematically rigorous. The space of the state vectors is the classical Hilbert space and, in view of recent discussions we may add, this implies a positive definite metric.

The main result of this paper is the precise formulation of the concept of a multichannel scattering system and the proof of the existence of the scattering operator as well as its unitary property in a certain subspace of the Hilbert space. As was already pointed out by EKSTEIN[2]),[3]) the operator defined as S in our earlier paper, does not have a generalization in the multichannel case. The suitable operator for this purpose is another one defined and discussed in Section 2.

*) Supported in part by the National Science Foundation.
**) On leave of absence from the State University of Iowa, Iowa City, Iowa, U. S. A.

The results obtained are equally valid whether we are dealing with the relativistic or non-relativistic form of the theory. Furthermore, the formalism is developed in such a manner that the cases with bound states are also included. The number of channels need not be finite as it is the case for instance in nuclear reactions.

The formulation is sufficiently broad so as to include all known types of scattering and reaction processes. In particular, we feel confident that the formulation presented here will serve as a sufficiently precise mathematical framework within which it should be possible to accommodate the theories dealing with fundamental particles and their interactions.

2. The operators S and S' for simple scattering systems

A 'simple scattering system' was previously defined[1]) as a quantum mechanical system with the following properties:

For every $f \in \mathfrak{H}$ the strong limits

$$\lim_{t \to \mp\infty} V_t^* U_t f = f_\pm = \Omega_\pm f \tag{2.1}$$

exist and the range of the operators Ω_- is equal to the subspace N of the continuum states of V_t.

In these expressions $V_t = e^{-iHt}$ $(-\infty < t < +\infty)$ is the transformation group of the system and H is the total energy operator. The group $U_t = e^{-iH_0 t}$ represents the free motion of the system in the absence of the interaction. H_0 is the kinetic energy operator for the particles participating in the scattering process.

The conditions (2.1) have a direct interpretation in terms of the actual scattering process and they entail the existence of a unitary scattering operator

$$S = \Omega_-^* \Omega_+ . \tag{2.2}$$

The 'wave operators' $\Omega_\pm$ are isometries in all of $\mathfrak{H}$ and they satisfy for both signs

$$\left.\begin{aligned} \Omega^* \Omega &= I \\ \Omega \Omega^* &= E_N \end{aligned}\right\} \tag{2.3}$$

where E_N is the projection operator into the subspace of continuum states of H.

All these statements were proved in reference[1]) and are here briefly repeated for convenience.

The definition (2.2) of the scattering operator is the one which is usually implied in much of the current literature on this subject. It is possible to

define a different scattering operator, which we shall temporarily denote by S':

$$S' = \Omega_+ \Omega_-^* . \tag{2.4}$$

This operator has properties very similar to S which we shall enumerate here briefly.

The interest in this operator arises from the fact that in a multi-channel theory it has a proper generalization while the operator (2.2) cannot be so generalized.

We observe first that the operator product in (2.4) is well defined since the Ω and Ω^* are bounded operators and are therefore defined in the entire space $\mathfrak{H}$. We can further form without restriction the products

$$S'S'^* = \Omega_+ \Omega_-^* \Omega_- \Omega_+^* = \Omega_+ \Omega_+^* = E_N , \tag{2.5}$$

and similarly

$$S'^* S' = E_N . \tag{2.6}$$

Furthermore

$$E_N S' = \Omega_+ \Omega_+^* \Omega_+ \Omega_-^* = \Omega_+ \Omega_-^* = S' , \tag{2.7}$$

and similarly

$$S' E_N = S' . \tag{2.8}$$

The operator S' annihilates therefore all the elements in $M = N^\perp$ and in the invariant subspace N it is unitary. We shall say S' is 'quasi-unitary'.

The following relations between the two operators S and S' are direct consequences of the definitions (2.2), (2.4) and the relations (2.3).

$$\Omega_+^* S' \Omega_+ = S = \Omega_-^* S' \Omega_- , \tag{2.9}$$

$$\Omega_+^* S' \Omega_+ = I , \tag{2.10}$$

$$\Omega_-^* S' \Omega_+ = S^2 . \tag{2.11}$$

The operator S' commutes with V_t but not with U_t. This follows from the intertwining property of Ω which was proved in reference[1]):

$$V_t \Omega = \Omega U_t . \tag{2.12}$$

For instance one obtains

$$S' V_t = \Omega_+ \Omega_-^* V_t = \Omega_+ U_t \Omega_-^* = V_t \Omega_+ \Omega_-^* = V_t S' .$$

Since U_t does not commute with S' the operator $S'(t) = U_t^* S U_t$ depends on t. It satisfies the following relations

$$S'(-\infty) = S'(+\infty) = S . \tag{2.13}$$

These limits are understood in the strong operator topology. This means for every $f \in \mathfrak{H}$ we have

$$\| (S'(t) - S) f \| \to 0 \qquad \text{for } t \to \pm\infty . \tag{2.14}$$

One may verify this by using the relations proved in reference[1]):

$$\begin{aligned} \Omega_+(+\infty) &= S = \Omega_-(-\infty) \\ \Omega_+(-\infty) &= I = \Omega_-(+\infty) , \end{aligned} \tag{2.15}$$

where $\Omega(t) = U_t^* \Omega U_t$. Thus for the limit $t \to \infty$ we write the decomposition

$$S'(t) - S = \Omega_+(t) (\Omega_-^*(t) - I) + (\Omega_+(t) - S) .$$

Using the boundedness of the $\Omega(t)$, we find

$$\| (S'(t) - S) f \| \leq \| (\Omega_-^*(t) - I) f \| + \| (\Omega_+(t) - S) f \| . \tag{2.16}$$

Since both terms on the right hand side tend to zero with $t \to +\infty$ by (2.15) the left hand side does so too and one of the relations (2.13) is established. The other is verified similarly.

3. The channel energy

The most characteristic feature of the general scattering process is the occurrence of 'free' particles before and after the collision. Every set of free particles is characterized by a set of parameters which expresses the values of the rest masses, spin, charge and whatever other variables are needed for a full description of the free particles. Each possible set of values for these parameters determines a different 'channel' of the system.

A free particle is one which moves exactly the same as if other particles were not present. The Hamiltonian for the free motion of the particles in a channel (also called the channel Hamiltonian) is therefore merely the sum of the kinetic energy of all the particles in the channel. This Hamiltonian is in general not obtained from the total Hamiltonian by the mere omission of certain terms, as it was the case in the simple scattering systems.

We shall illustrate this on one of the simplest examples of multichannel scattering. Let us consider three fundamental particles labelled 1, 2 and 3.

Let the total Hamiltonian be of the form

$$H = \frac{p_1^2}{2 m_1} + \frac{p_2^2}{2 m_2} + \frac{p_3^2}{2 m_3} + V_{12} + V_{23} + V_{31}$$

where the potentials V_{rs} describe the three possible two-body interactions of these particles. Let us assume the interaction between 1 and 2 is such

that there exists one or more bound states, represented by square integrable solutions of the Schrödinger equation

$$\left(\frac{p_1^2}{2\,m_1} + \frac{p_2^2}{2\,m_2} + V_{12}\right)\Psi = E\,\Psi$$

The state vector Ψ describes then a fragment which can enter a scattering process or which may be produced as a final state. The total mass of the fragment is

$$M = m_1 + m_2 - |\,E\,|\,,$$

and the total kinetic energy is given by

$$H_0 = \begin{cases} \frac{1}{2\,M}\,\boldsymbol{P}^2 & \text{non relativistic} \\ \sqrt{\boldsymbol{M}^2 + \boldsymbol{P}^2} & \text{relativistic} \end{cases}$$

where $\boldsymbol{P} = (\boldsymbol{p}_1 + \boldsymbol{p}_2)$ is the momentum of the centre of mass.

It is conceivable that the interaction between another pair, say 2 and 3, is sufficiently strong so as to produce also a bound state. This will give rise to a new fragment of the mass

$$M' = m_2 + m_3 - |\,E'\,|$$

where E' is the binding energy of particle 2 and 3. The corresponding expression for the kinetic energy of this fragment is then given by

$$H_0 = \begin{cases} \frac{1}{2\,M'}\,\boldsymbol{P}'^2 & \text{non relativistic} \\ \sqrt{M'^2 + \boldsymbol{P}'^2} & \text{relativistic} \end{cases}$$

where $\boldsymbol{P}' = (\boldsymbol{p}_2 + \boldsymbol{p}_3)$.

In this description every bound state which leads to a different binding energy is in a different channel. For a degenerate bound state we obtain a fragment with additional internal degrees of freedom.

It is clear from this example how one would obtain the most general channel Hamiltonian for the fragments composed of any number of particles. We shall not elaborate this approach however. Instead we shall formulate the properties of channel Hamiltonians which we believe to be essential for the mathematical formulation of multichannel scattering theory.

These properties are purposely fromulated sufficiently general so that they would presumably be satisfied for elementary particles as well as stable fragments. From the point of view of scattering theory the distinction between elementary particle and composite fragments is an entirely superficial one and this is as it should be. The physical picture of an

elementary particle breaks down as soon as internal structure reveals itself in certain collision processes. On the other hand, a stable fragment may in every respect behave like a fundamental particle as long as the collisions are sufficiently slow to leave the fragment intact. In a good scattering theory therefore this distinction should not appear as an essential element.

In agreement with this requirement we shall describe the properties of the channel Hamiltonian which are derived from the description of channels in terms of fragments but which are presumed to have general validity for any kind of particle composite or elementary. Instead of working with the channel Hamiltonian H we shall immediately express the characteristic properties in terms of the 'channel operators'

$$U_t^{(\alpha)} \equiv e^{-iH_\alpha t} .$$

Channel operators $U_t^{(\alpha)}$ are a set of continuous unitary representations of the additive group of real numbers $(-\infty < t < +\infty)$ in the underlying Hilbert space of state vectors with the following three properties:

(1) All $U_t^{(\alpha)}$ commute with one another for all α and all t:

$$[U_t^{(\alpha)}, U_{t'}^{(\beta)}] = 0 , \text{ all } \alpha,\beta,t,t'. \tag{3.1}$$

(2) The family of spectral projections of the infinitesimal generators of the group are continuous. There are no discrete eigenvalues.

(3) The operators $U_t^{(\alpha)}$ are 'essentially different' for different indices. With this we mean

$$U_t^{(\alpha)} f = U_t^{(\beta)} f \text{ for all } t \text{ implies } f = 0 \text{ unless } \alpha = \beta . \tag{3.2}$$

4. The definition of a scattering system

The channel operator which we have defined in the preceding section are rarely known explicitly. Instead one usually knows only the total energy operator H or its corresponding unitary group

$$V_t = e^{-iHt} . \tag{4.1}$$

It is clear that all the information as to the possible occurrence of various particles as well as their physical properties should be contained in the structure of the group (4.1). The different particles form the different channels and are described by certain channel operators $U_t^{(\alpha)}$. We shall now formulate the condition which is needed in order that the group (4.1) describes particles associated with certain channel operators $U_t^{(\alpha)}$:

A unitary group $U_t^{(\alpha)}$ with the three properties described in the preceding section is a channel of the system defined by V_t if there exists at

least one element $f \in \mathfrak{H}$, $f \neq 0$, for which the strong limits

$$\lim_{t \to \pm\infty} V_t^* U_t^{(\alpha)} f = f_\pm^{(\alpha)} \tag{4.2}$$

exist.

The condition (4.2) may be considered the defining property of a channel energy. It extracts from the total transformation operator the kind and energy of the stable fragments which can be associated with it. Since this condition is an asymptotic property the definition of particles which are obtained in this way includes already all the possible self interactions. In the language of field theory: The particles are 'dressed particles'.

On the other hand, we see that in general it is not possible of introducing one single free-particle Hamiltonian. Every channel, that is every kind of free particles, has its own energy operator associated with it.

As a first consequence of the defining property (4.2) we shall show that if there exists one single element f for which (4.2) is satisfied, then there exists an infinite-dimensional subspace of $\mathfrak{H}$ with the same property.

Let D_α be the set of elements f such that the limit (4.2) exists. We first observe that D_α is a closed linear manifold, that is a subspace of $\mathfrak{H}$. The linear property is obvious. In order to prove the closure property we consider an arbitrary sequence $f_n \in D_\alpha$ for which $f_n \to f$ with $n \to \infty$. We must show that the limit (4.2) exists for the element f.

Let us define $W_{t_1 t_2} \equiv V_{t_1}^* U_{t_1} - V_{t_2}^* U_{t_2}$, then

$$\| W_{t_1 t_2} f \| \leq \| W_{t_1 t_2} f_n \| + \| W_{t_1 t_2} (f - f_n) \| .$$

The second term may further be estimated by

$$\| W_{t_1 t_2} (f - f_n) \| \leq \| W_{t_1 t_2} \| \, \| f - f_n \| \leq 2 \| f - f_n \| .$$

The last step is a consequence of the triangle inequality

$$\| A + B \| \leq \| A \| + \| B \|$$

for the bounds of bounded operators.

We have therefore in all

$$\| W_{t_1 t_2} f \| \leq \| W_{t_1 t_2} f_n \| + 2 \| f - f_n \| .$$

We choose first a fixed n such that, independently of t_1 and t_2 the last term is $\leq \epsilon/2$ for an arbitrary $\epsilon > 0$. We then determine a T, such that for $t_1 > T$ and $t_2 > T$ the first term is $\leq \epsilon/2$ too. This is possible because $f_n \in D_\alpha$. For such values of t_1 and t_2 we have then

$$\| W_{t_1 t_2} f \| \leq \epsilon \qquad \text{all } t_1 > T, \; t_2 > T.$$

The elements of the form $V_t^* U_t f$ satisfy therefore the Cauchy criterion and because of the completeness of $\mathfrak{H}$ $\lim_{t \to +\infty} V_t^* U_t f$ exists. The limit $t \to -\infty$ is established in the same manner. Thus D_α is closed, q.e.d.

We now show that the subspace D_α is invariant under the group $U_t^{(\alpha)}$. This means if $f \in D_\alpha$ then $U_\tau^{(\alpha)} f \in D_\alpha$. Indeed

$$\lim_{t \to \pm\infty} V_t^* U_t^{(\alpha)} U_\tau^{(\alpha)} f = \lim_{t \to \pm\infty} V_\tau V_t^* U_t^{(\alpha)} f = V_\tau f_\mp^{(\alpha)}, \tag{4.3}$$

and D_α is seen to be invariant under $U_t^{(\alpha)}$.

We can now easily complete the proof that D_α is infinite dimensional. Assume to the contrary that D_α is finite dimensional. Then the reduction of $U_t^{(\alpha)}$ to the invariant subspace D_α furnishes a finite dimensional unitary representation of the group of real numbers. Such a representation has only discrete eigenvalues, this contradicts the basic property (2) of the previous section. Thus D_α is infinite dimensional, q. e. d.

It was shown previously[1]) that the mapping $f \to f_\pm^{(\alpha)}$ is a linear isometry. The ranges $R_\pm^{(\alpha)}$ of this correspondence are therefore closed linear manifolds, that is subspaces.

The set of subspaces $R_\pm^{(\alpha)}$ as α runs through all the channels of the system span a linear manifold which we denote by $\{R_\pm^{(\alpha)}\}$. Its closure shall be denoted by

$$R_\pm \equiv \overline{\{R_\pm^{(\alpha)}\}}. \tag{4.4}$$

We shall further write N for the subspace of continuum states of V_t, that is, the orthogonal complement of the subspace M of proper elements of V_t.

With these preliminaries out of the way we define the general scattering system as follows:

A quantum mechanical system, described by the unitary group V_t, is a scattering system if there exists a set of channels α, together with their unitary groups $U_t^{(\alpha)}$, such that

$$R_+ = N = R_-. \tag{4.5}$$

The physical meaning of the requirement (4.5) is simply this: Every continuum state must be a superposition of scattering states, that is, states which are in the ranges $R_\pm^{(\alpha)}$.

It is readily seen that this definition of the scattering system is a generalization of the definition[1]) for a 'simple scattering system' to which it reduces if there exists only one channel.

The number of channels may be finite or infinite. We shall see in the next section, however, that in case it is infinite it is necessarily countably inifnite.

This definition of a scattering system embodies the minimum requirements which must be placed on a scattering system. Yet there are some far reaching conclusions which can be drawn from it as we shall see in the following sections.

5. The wave operators

We shall now assume that V_t describes a general scattering system as defined in the preceding section. There exists then a set of commuting unitary groups $U_t^{(\alpha)}$ such that for all $f \in D_\alpha$

$$\lim_{t \to \mp \infty} V_t^* U_t^{(\alpha)} f = f_\pm^{(\alpha)}. \tag{5.1}$$

Let $R_\pm^{(\alpha)}$ be the set of elements $f_\pm^{(\alpha)}$. According to the previous paper[1]) the mapping of D_α onto $R_\pm^{(\alpha)}$ is a linear isometry, and $R_\pm^{(\alpha)}$ is a subspace (= closed linear manifold). This mapping defines therefore a bounded linear operator $\Omega_\pm^{(\alpha)}$ on D_α by the condition

$$\Omega_\pm^{(\alpha)} f = f_\pm^{(\alpha)} \qquad f \in D_\alpha. \tag{5.2}$$

Such an operator can always be extended in a continuous manner to the whole space by, for instance, the following procedure: Let $f \in \mathfrak{H}$ and $f = g + h$, $g \in D_\alpha$, $h \in D_\alpha^\perp$. Define

$$\Omega_\pm^{(\alpha)} f = \Omega_\pm^{(\alpha)} g. \tag{5.3}$$

We shall denote this extended operator with the same symbol.

To every bounded operator $\Omega_\pm^{(\alpha)}$ can be associated uniquely[4]) an adjoint operator $\Omega_\pm^{(\alpha)*}$ by the condition

$$(\Omega_\pm^{(\alpha)*} f, g) = (f, \Omega_\pm^{(\alpha)} g) \tag{5.4}$$

for all $f, g \in \mathfrak{H}$. It follows from this definition that $\Omega_\pm^{(\alpha)*}$ vanishes on the orthogonal complement $R_\pm^{(\alpha)\perp}$ of the range of $\Omega_\pm^{(\alpha)}$.

In order to survey some of the general properties of the wave operators we shall introduce a few definitions and deduce from them some elementary consequences.

Definition 1:

A bounded linear operator Ω is a partial isometry if $E \equiv \Omega^* \Omega$ is a projection.

It follows that if Ω is a partial isometry then $F \equiv \Omega \Omega^*$ is also a projection.

In order to see this we note that

$$(\Omega(E \quad I))^* \Omega(E \quad I) \quad (E \quad I)\, \Omega^* \Omega\, (E - I) \quad (E \quad I)\, E(E - I) \quad 0\,.$$

Therefore for any $f \in \mathfrak{H}$

$$\| \Omega(E - I)\, f \|^2 = (f, (\Omega(E - I))^* \Omega(E - I)\, f) = 0\,,$$

that is $\Omega(E - I)\, f = 0$ for any $f \in \mathfrak{H}$,

or
$$\Omega(E - I) = 0\,, \tag{5.5}$$

or also
$$\Omega E = \Omega\,. \tag{5.6}$$

From this we obtain

$$F^2 = \Omega\Omega^* \Omega\Omega^* = \Omega E \Omega^* = \Omega\Omega^* = F$$

and
$$F^* = F\,.$$

The last two relations express that F is a projection.

Definition 2:

If Ω is a partial isometry then
$E = \Omega^*\Omega$ is called the right-projection and
$F = \Omega\Omega^*$ the left-projection of Ω.

It follows obviously that conversely E is the left-projection and F the right-projection of Ω^*.

Left- and right-projections have a maximal property as follows:

The projection E is the smallest projection with the property

$$\Omega E - \Omega$$

and F is the smallest projection with the property

$$F\, \Omega = \Omega\,.$$

We recall the partial ordering of projections: The projection E is smaller than E_1, if for every $f \in \mathfrak{H}$

$$\| E f \| \leqslant \| E_1 f \|\,.$$

This will be written as $E \leq E_1$. An equivalent fromulation of this relation is $E_1 E = E E_1 = E$.

In order to verify the maximal property of the projection E let us assume that E_1 is another projection such that

$$\Omega E_1 = \Omega\,.$$

We have then

$$\Omega^*\Omega E_1 = \Omega^*\Omega = E$$

or

$$EE_1 = E$$

Since both E and E_1 are projections we obtain also by taking the adjoint

$$E_1 E = E$$

which means $E \leq E_1$. The second half of the assertion is proved in a similar manner.

The subspaces which are the ranges of the projections E and F are respectively the ranges of Ω^* and of Ω. For instance if f is in the range of F then $Ff = f = \Omega\Omega^* f$, hence it is in the range of Ω. Conversely if f is in the range of Ω there exists a g such that $f = \Omega g = F\Omega g$. Therefore f is also in the range of F. The two ranges are identical. In a similar way one verifies the second half of the statement.

We shall now apply these concepts to the operators $\Omega_{\pm}^{(\alpha)}$. From the earlier paper[1]) and the extension (5.3) it follows that they are partial isometries. We define

$$E_\alpha = \Omega_-^{(\alpha)*}\,\Omega_-^{(\alpha)} \tag{5.7}$$

$$F^{(\alpha)} = \Omega_-^{(\alpha)}\,\Omega_-^{(\alpha)*}. \tag{5.8}$$

For the projections E_α the distinction between the two cases $\pm$ is unnecessary since the two projections are identical.

We shall now prove the main result of this section:

Theorem:

The projections $F_-^{(\alpha)}$ are orthogonal for different channels, in the sense

$$F_+^{(\alpha)} F_+^{(\beta)} = F_-^{(\alpha)} F_-^{(\beta)} = 0 \quad \text{for} \quad \alpha \neq \beta. \tag{5.9}$$

Proof:

We shall prove the case with the minus sign and omit the sign index.

A fully equivalent statement of the theorem is the following: Let $f^{(\alpha)}$ and $g^{(\beta)}$ be any two elements of $\mathfrak{H}$ with the property

$$F^{(\alpha)} f^{(\alpha)} = f^{(\alpha)}, \quad F^{(\beta)} g^{(\beta)} = g^{(\beta)} \tag{5.10}$$

then

$$(f^{(\alpha)}, g^{(\beta)}) = 0 \quad \text{for} \quad \alpha \neq \beta. \tag{5.11}$$

We shall prove the theorem in this form.

According to the preceding remarks the elements $f^{(\alpha)}$ and $g^{(\beta)}$ are in the ranges of the operators $\Omega^{(\alpha)}$ and $\Omega^{(\beta)}$ respectively. This means there

exists element $f \in D_\alpha$ and $g \in D_\beta$ such that

$$f_t^{(\alpha)} \equiv V_t^* U_t^{(\alpha)} f \to f^{(\alpha)} \quad \text{for} \quad t \to \infty \tag{5.12}$$

$$g_t^{(\beta)} \equiv V_t^* U_t^{(\beta)} f \to g^{(\beta)} \quad \text{for} \quad t \to \infty . \tag{5.13}$$

We shall first show that for any pair of elements f and g the operators

$$W_t \equiv U_t^{(\alpha)*} U_t^{(\beta)} \tag{5.14}$$

which are also a unitary group, converge weakly to zero in the limit $t \to \infty$. This means

$$(f, W_t g) \to 0 , \quad \text{for } t \to \infty ; \; f \in D_\alpha , \; g \in D_\beta . \tag{5.15}$$

We shall first show that the limit exists and then that it is zero.

That it exists may be seen from

$$(f, W_t g) = (f_t^{(\alpha)}, g_t^{(\beta)}) . \tag{5.16}$$

Both $f_t^{(\alpha)}$ and $g_t^{(\beta)}$ strongly converge to $f^{(\alpha)}$ and $g^{(\beta)}$ respectively and their scalar product converges to $(f^{(\alpha)}, g^{(\beta)})$:

$$\begin{aligned} &| (f_t^{(\alpha)}, g_t^{(\beta)}) - (f^{(\alpha)}, g^{(\beta)}) | \\ &\leq | ((f_t^{(\alpha)} - f^{(\alpha)}) , g_t^{(\beta)} | + | (f^{(\alpha)}, (g_t^{(\beta)} - g^{(\beta)})) | \\ &\leq \| f_t^{(\alpha)} - f^{(\alpha)} \| \; \| g^{(\beta)} \| + \| f^{(\alpha)} \| \; \| g_t^{(\beta)} - g^{(\beta)} \| . \end{aligned}$$

We have made use of Schwartz's inequality and $\| g_t^{(\beta)} \| = \| g^{(\beta)} \|$. Since each of the t-dependent factors goes to zero (Equation (5.12) and (5.13)) the assertion that the limit $(f, W_t g)$ exists for $t \to \infty$ follows. Moreover, it is shown that this limit is equal to $(f^{(\alpha)}, g^{(\beta)})$.

We shall next show that this limit is zero. This is easily established by using a corollary of the mean ergodic theorem of v. NEUMANN[5]). According to this

$$\lim_{T \to \infty} \frac{1}{T} \int_0^T (f, W_t g) = (f, Pg) \tag{5.17}$$

where P is the projection operator into the subspace of proper elements of W_t with eigenvalue + 1. On the other hand, since the integrand has the limit $(f^{(\alpha)}, g^{(\beta)})$ for $t \to \infty$ we also have

$$(f, Pg) = (f^{(\alpha)}, g^{(\beta)}) . \tag{5.18}$$

It remains to show that P is the zero operator.

Suppose f is in the range of P then by definition of P

$$W_t f = f \quad \text{for all } t$$

or

$$U_t^{(\alpha)} f = U_t^{(\beta)} f \quad (\alpha \neq \beta). \tag{5.19}$$

According to property (3) of the channel operators (Section 3) this imples $f = 0$. Consequently $P = 0$ and therefore by (5.18) $(f^{(\alpha)}, g^{(\beta)}) = 0$. Since $f^{(\alpha)}$ and $g^{(\beta)}$ were arbitrary elements in the ranges $F^{(\alpha)}$ and $F^{(\beta)}$ we have

$$F^{(\alpha)} F^{(\beta)} = 0 \quad \text{for} \quad \alpha \neq \beta \,. \text{ q.e.d.}$$

We shall now mention a few useful consequences of this theorem.

First we observe that the number of channels is either finite or countably infinite. Indeed, since $\mathfrak{H}$ is separable and the projections $F^{(\alpha)}$ orthogonal, their number is at most countably infinite and it is equal to the number of channels.

Furthermore since by the definition of the scattering system the closed linear manifold spanned by the ranges $R_{\pm}^{(\alpha)}$ is the whole of the space of continuum states N, we have

$$E_N = \sum_{\alpha} F_{+}^{(\alpha)} = \sum_{\beta} F_{-}^{(\beta)} , \tag{5.20}$$

where E_N is the projection operator with range N.

As a further consequence of the orthogonality relations (5.9) we have

$$\Omega_{+}^{(\alpha)*} \Omega_{+}^{(\beta)} = E_\alpha \delta_{\alpha\beta} = \Omega_{-}^{(\alpha)*} \Omega_{-}^{(\beta)} . \tag{5.21}$$

For instance the first of these equations is obtained from

$$\Omega_{+}^{(\alpha)*} \Omega_{+}^{(\beta)} = \Omega_{+}^{(\alpha)*} F_{+}^{(\alpha)} F_{+}^{(\beta)} \Omega_{+}^{(\beta)} = \Omega_{+}^{(\alpha)*} F_{+}^{(\alpha)} \Omega_{+}^{(\beta)} \delta_{\alpha\beta} = \Omega_{+}^{(\alpha)*} \Omega_{+}^{(\beta)} \delta_{\alpha\beta} = E_\alpha \delta_{\alpha\beta} .$$

Finally we note that the operators $\Omega^{(\alpha)}$ have the intertwining property

$$V_t \Omega^{(\alpha)} = \Omega^{(\alpha)} U_t^{(\alpha)} \tag{5.22}$$

from which follows, among other things, that the projections $F_{\pm}^{(\alpha)}$ commute with V_t

$$\left[F_{\pm}^{(\alpha)}, V_t\right] = 0 \quad \text{all } t, \text{ all } \alpha . \tag{5.23}$$

There is no orthogonality theorem for the domains D_α, or their projections E_α. In fact it is quite possible that one of the domains D_α may be the entire space $\mathfrak{H}$. In any case the different E_α are in general not orthogonal.

6. The scattering operator

The operator to be defined is the generalization of the operator S' of Section 2. In order to avoid a too cumbersome notation, we shall omit the prime.

We define a sequence of operators S_n by

$$S_n = \sum_{\alpha=1}^{n} \Omega_+^{(\alpha)} \Omega_-^{(\alpha)*} \tag{6.1}$$

and investigate the limiting properties of these operators as n increases indefinitely. When the number of channels is finite then the sequence S_n is finite and stops for some number n_0. In this case there is no limit problem. We define

$$S = S_{n_0}. \tag{6.2}$$

In case the number of channels is infinite S_n converges strongly with $n \to \infty$ to a limit S on all of $\mathfrak{H}$.

To show this consider an arbitrary element $f \in \mathfrak{H}$ and the sequence

$$f_n = S_n f. \tag{6.3}$$

We must show f_n converges to some element g. Because $\mathfrak{H}$ is complete it suffices to show that f_n is a Cauchy sequence.
Assuming $n \geq m$, we have

$$\| f_n - f_m \|^2 = \| (S_n - S_m) f \|^2 = \left(f, \sum_{\alpha,\beta=m}^{n} \Omega_-^{(\alpha)} \Omega_+^{(\alpha)*} \Omega_+^{(\beta)} \Omega_-^{(\beta)*} f \right).$$

The general term under the summation sign can be simplified by using Equation (5.7) and (5.8).

$$\Omega_-^{(\alpha)} \Omega_+^{(\alpha)*} \Omega_+^{(\beta)} \Omega_-^{(\beta)*} = \delta_{\alpha\beta} \Omega_-^{(\alpha)} E_\alpha \Omega_-^{(\beta)*} = \delta_{\alpha\beta} \Omega_-^{(\alpha)} \Omega_-^{(\alpha)*} = \delta_{\alpha\beta} F_-^{(\alpha)}. \tag{6.4}$$

Hence

$$\| f_n - f_m \|^2 = \left(f, \sum_{\alpha=m}^{n} F_-^{(\alpha)} f \right). \tag{6.5}$$

According to Equation (5.9) the projections are all mutually orthogonal. Hence

$$G_n \equiv \sum_{\alpha=1}^{n} F_-^{(\alpha)}$$

is a sequence of non-decreasing projections. Such a sequence converges strongly to a projection. The sequence of elements

$$g_n \equiv G_n f$$

is therefore a Cauchy sequence and since

$$\| f_n - f_m \|^2 = \| g_n - g_m \|^2$$

f_n is also a Cauchy sequence. The strong limit $n \to \infty$ exists

$$g = \lim_{n \to \infty} f_n$$

and the correspondence

$$f \to g = Sf$$

defines the linear operator

$$S = \sum_{\alpha=1}^{\infty} \Omega_+^{(\alpha)} \Omega_-^{(\alpha)*} . \tag{6.6}$$

This is the scattering operator.

Next we prove that S is quasi-unitary:

$$S^*S = SS^* = E_N . \tag{6.7}$$

For instance, using the identity (6.4), we find with (5.20)

$$S^*S = \sum_{\alpha=1}^{\infty} F_-^{(\alpha)} = E_N \tag{6.8}$$

$$SS^* = \sum_{\alpha=1}^{\infty} F_+^{(\alpha)} = E_N . \tag{6.9}$$

Since V_t commutes with all terms in the sum (6.6) (cf. Equation (5.22)) we have also

$$[V_t, S] = 0 . \tag{6.10}$$

The following relations are also useful

$$\Omega_-^{(\beta)*} S \Omega_-^{(\alpha)} = \Omega_+^{(\beta)*} S \Omega_+^{(\alpha)} = \Omega_-^{(\beta)*} \Omega_+^{(\alpha)} . \tag{6.11}$$

The physical interpretation of the scattering operator is obtained from the matrix elements. Let the system be at $t \to -\infty$ in a channel α. With this we mean that it approaches in the norm for $t \to -\infty$ the state $U_t^{(\alpha)} f_\alpha$, where $f_\alpha \in D_\alpha$ and $\| f_\alpha \| = 1$. Because of the basic property of scattering systems, this also approaches in the norm $V_t f_+^{(\alpha)}$ as $t \to -\infty$. The probability for finding the system at time t in the state $U_t^{(\alpha)} f_\beta$ ($f_\beta \in D_\beta$) of channel β is then

$$P_{\beta\alpha}(t) = | (U_t^{(\beta)} f , V_t f_+^{(\alpha)}) |^2 .$$

In the limit $t \to \infty$ we have

$$(U_t^{(\beta)} f_\beta,\ V_t f_+^{(\alpha)}) = (V_t^* U_t^{(\beta)} f_\beta,\ f_+^{(\alpha)}) \to (f_-^{(\beta)}, f_+^{(\alpha)}) .$$

We can write the last expression in the equivalent forms (cf. Equation (6.11))

$$\begin{aligned}(f_-^{(\beta)}, f_+^{(\alpha)}) &= (f_-^{(\beta)}, S f_-^{(\alpha)}) = (f_+^{(\beta)}, S f_+^{(\alpha)}) \\ &= (f_\beta,\ \Omega_-^{(\beta)*} S \Omega_-^{(\alpha)} f_\alpha) \\ &= (f_\beta,\ \Omega_+^{(\beta)*} S \Omega_+^{(\alpha)} f_\alpha) . \qquad (6.12)\end{aligned}$$

These expressions lead to the usual formulae for scattering cross-sections and decay time when properly specialized.

7. Asymptotic properties of observables

In this section we shall investigate the question how the asymptotic behaviour of observables is related to the S-operator in a general scattering system. This question is of interest because the asymptotic operators have often been introduced as auxiliary quantities in the definition of the scattering operator[6],[7]. In fact in more recent works the tendency has been to formulate the scattering theory in such a manner that no explicit reference is made to the free Hamiltonian describing 'bare' particles. Instead one attempts to replace it by the asymptotic properties of a sufficiently complete set of observables (or field operators). The relation between these observables in the past and the future is then used for the definition of the scattering operator[3],[8].

We shall examine here the asymptotic properties of observables from the point of view of the rigorous scattering theory.

Let A be a self-adjoint, bounded operator in $\mathfrak{H}$, representing an observable. We shall assume that A is independent of time in the Schrödinger picture in which state vectors change in time according to

$$f_t = V_t f . \qquad (7.1)$$

In the Heisenberg picture the operator A varies in time according to

$$A_t = V_t^* A V_t \qquad (7.2)$$

while the state vectors are constant.

We shall first discuss the case of a 'simple scattering system', that is, a system with one channel only[1]. The transformation operator for this channel shall be denoted, as before, by $U_t = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}H_0 t}$.

The asymptotic condition as usually formulated is to assume that with every operator A there are associated two operators A_{in} and A_{out} which

in some sense, to be made precise, represent the operator A in the distant past and the remote future.

The A_{in} and A_{out} are considered the observables of free particle motion. The definition of the operators A_{in} and A_{out} is not unique even for the case of simple scattering systems. The ambiguity is related to the ambiguity in the definition of the scattering operator discussed in section 2 of this paper.

One sense in which the asymptotic condition can be made precise is to require the weak convergence of the operators $U_t A_t U_t^*$ to the constant operators A_{in} and A_{out} for the respective limits $t \to -\infty$, and $t \to +\infty$.

In other words, for any two elements $f, g \in \mathfrak{H}$ we shall have

$$\begin{aligned} &(f, U_t A_t U_t^* g) \to (f, A_{\text{in}} g) \quad \text{for } t \to -\infty, \\ \text{and} \\ &(f, U_t A_t U_t^* g) \to (f, A_{\text{out}} g) \quad \text{for } t \to +\infty. \end{aligned} \tag{7.3}$$

We shall now examine whether this condition is in fact satisfied for simple scattering systems and whether it can be used for the definition of the S-operator.

From the identity

$$U_t V_t^* U_t^* - \Omega_- A \Omega_- = U_t V_t^* A (V_t U_t^* - \Omega_-) + (U_t V_t^* - \Omega_-^*) A \Omega_-$$

we find

$$\begin{aligned} &| (f, (U_t A_t U_t^* - \Omega_- A \Omega_-) g) | \\ &\leqslant | (f, U_t V_t^* A (V_t U_t^* - \Omega_-) g) | + | f, (U_t V_t^* - \Omega_-^*) A \Omega_- g) |. \end{aligned}$$

For the first term we have by Schwartz' inequality

$$\begin{aligned} &| (f, U_t V_t^* A (V_t U_t^* - \Omega_-) g) | \\ &< | f | \, \| A \| \, | (V_t U_t^* - \Omega_-) g |. \end{aligned}$$

This term tends to zero with $t \to -\infty$ for all $f, g \in \mathfrak{H}$ as a consequence of the basic property of a simple scattering system.

For the second term we have

$$\begin{aligned} &| (f, (U_t V_t^* - \Omega_-^*) A \Omega_- g) | \\ &\leqslant | f | \, \| A \| \, | (V_t U_t^* - \Omega_-) g \| \end{aligned}$$

and this is again convergent to zero for $t \to -\infty$. We have thus verified the weak convergence of

$$U_t A_t U_t^* \text{ to } A_{\text{in}} \equiv \Omega_-^* A \Omega_- \text{ for } t \to -\infty.$$

We remark that we could have asserted strong convergence for operators A which leave the subspace N of continuum states invariant. Indeed we have

$$\| (U_t A_t U_t^* - A_{\text{in}}) f \| \leqslant \| U_t V_t^* A (\Omega_- - V_t U_t^*) f \| + \| (\Omega_-^* - U_t V_t^*) A \Omega_- f \| .$$

The first term converges to zero without restriction for $t \to -\infty$. For the second term on the other hand we can only assert convergence if $A \Omega_- f \in N$. Since $\Omega_- f \in N$ this is assured if N is invariant under A.

If $N = \mathfrak{H}$, that is if there are no bound states, this is no restriction and strong convergence can always be asserted in that case.

In a similar way one can discuss the operators A_{out} and the convergence of the corresponding expressions in the limit $t \to +\infty$. The relation between A_{in} and A_{out} is then obtained from the two defining equations

$$\begin{aligned} A_{\text{in}} &= \Omega_-^* A \Omega_- \\ A_{\text{out}} &= \Omega_+^* A \Omega_+ . \end{aligned} \tag{7.4}$$

If we multiply the second Equation (7.4) from the left with Ω_+ and from the right with Ω_+^*, we obtain first

$$\Omega_+ A_{\text{out}} \Omega_+^* = F A F \tag{7.5}$$

where F is the left projection of Ω_+ with range N. Multiplying now (7.5) from the left with Ω_-^* and from the right with Ω_- we obtain

$$\Omega_-^* \Omega_+ A_{\text{out}} \Omega_+^* \Omega_- = A_{\text{in}} . \tag{7.6}$$

Here we have used the fact that the left projection of $\Omega_\pm$ are the same for simple scattering systems. This leads to the definition of the S-operator according to

$$A_{\text{out}} = S^* A_{\text{in}} S \tag{7.7}$$

with $S = \Omega_-^* \Omega_+$, in agreement with Equation (9) reference[8]). The S-operator obtained in this manner is the S-operator which does not allow a generalization to the multichannel case. The definition of S through Equations (7.3) and (7.5) is therefore only suitable for the 'simple scattering systems'.

A different definition of A_{in} and A_{out} which is used by EKSTEIN[3]), allows a generalization to the multichannel case. We shall again use the same notation as before even though the operators to be defined now differ from the ones discussed so far.

We verify first that for $f, g \in N$

$$(f, A_t g) \to (f, \Omega_- A(t) \Omega_-^* g) \quad \text{for} \quad t \to +\infty . \tag{7.8}$$

Where

$$A_t = V_t^* A V_t$$

$$A(t) = U_t^* A U_t .$$

Indeed

$$|(f, A_t g) - (f, \Omega_- A(t) \Omega_-^* g)|$$

$$\leqslant |(f, V_t^* A (V_t - U_t \Omega_-^*) g)| + |(f, (V_t^* - \Omega_- U_t^*) A U_t \Omega_-^* g)| .$$

For the first term we have

$$|(f, V_t^* A (V_t - U_t \Omega_-^*) g)| \leqslant \|f\| \ \|A\| \ \|(I - V_t^* U_t \Omega_-^*) g\| .$$

Since $g \in N$

$$\lim_{t \to +\infty} V_t^* U_t \Omega_-^* g = \Omega_- \Omega_-^* g = F g = g .$$

Therefore the right hand side vanishes with $t \to +\infty$. For the second term we obtain

$$|(f, (V_t^* - \Omega_- U_t^*) A U_t \Omega_t^* g)|$$

$$\leqslant \|(I - V_t^* U_t \Omega_-^*) f\| \ \|A\| \ \|g\|$$

and this vanishes for $t \to \infty$ because $f \in N$. Thus relation (7.8) is established. A similar reasoning for $t \to -\infty$ leads to a corresponding relation. We can then define two time dependent observables $A_{in}(t)$ and $A_{out}(t)$ according to

$$\left.\begin{aligned} A_{\text{out}}(t) &\equiv \Omega_- A(t) \Omega_-^* \\ A_{\text{in}}(t) &= \Omega_+ A(t) \Omega_+^* \end{aligned}\right\} \tag{7.9}$$

As was pointed out by EKSTEIN[3]) these are not 'free' operators since their time dependence is only apparently governed by the free transformation operator U_t as may be seen from

$$\Omega_- A(t) \Omega_-^* = \Omega_- U_t^* A U_t \Omega_-^* = V_t^* \Omega_- A \Omega^* V_t .$$

By eliminating from (7.9) the operators $A(t)$, we obtain

$$A_{\text{out}}(t) = \Omega_- \Omega_+^* A_{\text{in}}(t) \Omega_+ \Omega_-^* \tag{7.10}$$

or

$$A_{\text{out}}(t) = S^* A_{\text{in}}(t) S , \tag{7.11}$$

with

$$S = \Omega_+ \Omega_-^* . \tag{7.12}$$

The similarity of (7.11) with (7.7) is superficial and misleading (as is the notation) since all the quantities involved in (7.11) are quite different from the ones occurring in (7.7). We shall not refer to (7.7) any more in the rest of the paper.

The generalization of these considerations to the multichannel case are now fairly straightforward. We need to show for instance the weak convergence for $f, g \in N$

$$(f, A_t g) \to (f, A_{\text{out}}(t)\, g) \quad \text{for} \quad t \to +\infty\,, \tag{7.13}$$

with

$$A_{\text{out}}(t) = \sum_{\alpha} \Omega_-^{(\alpha)} U_t^{(\alpha)*} A \sum_{\beta} U_t^{(\beta)} \Omega_-^{(\beta)*}\,. \tag{7.14}$$

To show this we use formula (5.20), and obtain for instance

$$g = E_N g = \sum_{\alpha} F_-^{(\alpha)} g\,, \tag{7.15}$$

and a similar decomposition for f. We shall write $f^{(\beta)} = F_-^{(\beta)} f$ and $g^{(\beta)} = F_-^{(\beta)} g$, so that

$$(f, A_t g) = \sum_{\alpha,\,\beta} (f^{(\alpha)}, A_t g^{(\beta)})\,, \tag{7.16}$$

and show that the general term under the summation sign converges to $(f^{(\alpha)}, A_{out}(t)\, g^{(\beta)})$ for $t \to +\infty$. This last expression may also be written as

$$(f^{(\alpha)}, \Omega_-^{(\alpha)} U_t^{(\alpha)*} A\, U_t^{(\beta)} \Omega_-^{(\beta)}) \quad \text{since } F_-^{(\alpha')} \Omega_-^{(\alpha)} = \delta_{\alpha'\alpha} \Omega_-^{(\alpha)}\,.$$

The stated convergence is now proved by writing

$$\begin{aligned} &|\, (f^{(\alpha)}, (A_t - A_{\text{out}}(t))\, g^{(\beta)})\,| \\ &\leqslant |\, (f^{(\alpha)}, V_t^* A\, (V_t - U_t^{(\beta)} \Omega_-^{(\beta)})\, g^{(\beta)})\,| \\ &+ |\, (f^{(\alpha)}, (V_t^* - \Omega_-^{(\alpha)} U_+^{(\alpha)*})\, A\, U_t^{(\beta)} \Omega_-^{(\beta)*} g^{(\beta)})\,|\,. \end{aligned}$$

The vanishing of the first factor in the limit $t \to +\infty$ follows now from

$$\|\, (V_t - U_t^{(\beta)} \Omega_-^{(\beta)})\, g^{(\beta)}\,\| \to 0 \quad \text{for} \quad t \to +\infty\,.$$

Similarly one concludes the vanishing of the second factor.

We summarize the result for convenience:

$$\begin{aligned} &(f, A_t g) \to (f, \underset{\text{in}}{A_{\text{out}}}(t)\, g) \quad \text{for} \quad t \to \pm\infty \\ &\qquad\qquad\qquad\qquad \text{and} \quad f, g \in N\,. \end{aligned} \tag{7.17}$$

$$\underset{\text{in}}{A_{\text{out}}}(t) = \sum_{\alpha} \Omega_{\mp}^{(\alpha)} U_t^{(\alpha)*} A \sum_{\beta} U_t^{(\beta)}\, \Omega_{\mp}^{(\beta)*}\,. \tag{7.18}$$

The relation between $A_{out}(t)$ and $A_{in}(t)$ is exactly as in the single channel case

$$A_{\text{out}}(t) = S^* A_{\text{in}}(t)\, S\,, \tag{7.19}$$

with S now defined as

$$S = \sum_{\alpha} \Omega_{+}^{(\alpha)}\, \Omega_{-}^{(\alpha)*}\,. \tag{7.20}$$

To prove this we eliminate A from the two relations (7.18). For instance we obtain by multiplying from the left with $\Omega_{-}^{(\alpha)*}$ and from the right with $\Omega_{+}^{(\beta)}$ using (5.21)

$$\Omega_{+}^{(\alpha)*} A_{\text{in}}(t)\, \Omega_{+}^{(\beta)} = E_\alpha U_t^{(\alpha)*} A\, U_t^{(\beta)} E_\beta\,.$$

This relation we multiply next from the left with $\Omega_{-}^{(\alpha)}$ and from the right with $\Omega_{-}^{(\beta)*}$ and sum over the indices α and β. Using the fact that E_α is right projection of Ω_α we find

$$S^* A_{\text{in}}(t)\, S = A_{\text{out}}(t)$$

with S given by (7.20).

The question needs to be examined whether this procedure can be used for the definition of the scattering operator. The answer is yes if the asymptotic operators $A_{out}(t)$ are known for a sufficiently large set of operators in A so that they generate in N an irreducible operator ring. The S-operator is then uniquely determined by (7.19) in the subspace N up to a numerical factor of magnitude 1.

It is also possible to introduce time-independent operators A_{in} and A_{out} by defining

$$\underset{\text{in}}{A_{\text{out}}}(t) = V_t^*\, \underset{\text{in}}{A_{\text{out}}}\, V_t\,. \tag{7.21}$$

By using the intertwining property (5.22) one obtains

$$\underset{\text{in}}{A_{\text{out}}} = \sum_{\alpha} \Omega_{\mp}^{(\alpha)} A \sum_{\beta} \Omega_{\mp}^{(\beta)*}, \tag{7.22}$$

and

$$A_{\text{out}} = S^* A_{\text{in}} S\,. \tag{7.23}$$

Appendix

In reference[1]) we have stated the following lemma: let $V_t = e^{-iHt}$ and $U_t = e^{-iH_0 t}$ be the unitary transformation groups associated with a 'simple scattering system'. Let Ω denote either Ω_- or Ω and let Ω_1 be any bounded intertwining operator such that

$$V_t\, \Omega_1 = \Omega_1\, U_t\,. \tag{1}$$

Denote by R the range of Ω (which is common to Ω_+ and Ω_-) and by R_1 the range of Ω_1 then

$$R_1 \subseteq R. \tag{2}$$

The proof given in reference[1]) was incorrect as indicated in the footnote. We shall here give a correct proof.

We remark first of all that it is sufficient to prove the theorem for intertwining operators which are isometries. This simplification is possible because if T is any bounded intertwining operator, then there exists another one W which is an isometry and which has exactly the same range as T.

This is a simple consequence of the well-known theorem on the polar decomposition of bounded linear operators[9]). According to this theorem one can associate with every bounded linear operator T a unique linear isometry W with the same left and right projections as T. It is related to T by the formulas

$$T = W R \tag{3}$$

and

$$R = (T^* T)^{\frac{1}{2}}. \tag{4}$$

The operator W is defined as follows: on all elements g of the form $g = Rf$, we have $Wg = Tf$. On the linear manifold $R(\mathfrak{H})$ of such elements W is homogeneous, additive and isometric. Such a transformation can be uniquely extended by continuity to the closed linear manifold $\overline{R(\mathfrak{H})}$, preserving these properties. On the orthogonal complement of this subspace W is zero by definition. W is then a partial isometry. Its left and right projections are the same as the left and right projections of T.

To apply this theorem for our case we assume that T is an intertwining operator such that

$$V_t T = T U_t. \tag{5}$$

We aim to show that then also

$$V_t W = W U_t \tag{6}$$

where W is the partial isometry just defined. In order to see this we evaluate the left-hand side of (6) as follows. Let the arbitrary f be decomposed $f = g + h$ with $g \in R(\mathfrak{H})$ and $h \in \overline{R(\mathfrak{H})}^{\perp}$. We have then $Wf = Wg$. Since g is of the form Ru with $u \in \mathfrak{H}$, or a limit point of such elements we have

$$Wf = Tu \text{ or the corresponding limiting relation.}$$

Consequently

$$V_t W f = V_t T u = T U_t u \tag{7}$$

On the other hand we have

$$U_t f = U_t g + U_t h\,,\ U_t g \in \overline{R(\mathfrak{H})} \ \text{ and } \ U_t h \in R(\mathfrak{H})^{\perp}$$

because R commutes with U_t.
Therefore

$$W U_t f = W U_t g = W U_t R u = W R U_t u = T U_t u\,. \tag{8}$$

Combining (7) and (8) we find for all f

$$V_t W f = W U_t f\,. \tag{9}$$

This is the content of Equation (6). It is thus sufficient to prove the theorem for partial isometries.

Let now Ω, be a partial isometry with the intertwining property

$$V_t \Omega_1 = \Omega_1 U_t\,. \tag{1}$$

The relation (1) can be extended to a certain class of bounded functions of V_t and U_t by a standard procedure*). In particular if F_λ and E_λ are the spectral revolutions associated with V_t and U_t such that

$$U_t = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-t\lambda i}\, dE_\lambda \tag{10}$$

$$V_t = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\lambda t}\, dF_\lambda\,. \tag{11}$$

Then we have also

$$F_\lambda \Omega_1 = \Omega_1 E_\lambda \tag{12}$$

from which follows

$$F_\lambda F_1 = \Omega_1 E_\lambda \Omega_1^* = F_1 F_\lambda \tag{13}$$

where

$$F_1 = \Omega_1 \Omega_1^* \tag{14}$$

is the left-projection of Ω_1.
Consider now an element f in the range of Ω_1 such that

$$f = F_1 f\,. \tag{15}$$

We decompose it according to

$$f = g + h$$

with $g \in R \equiv N$ and $h \in N^{\perp} = M$.
We wish to show that $h = 0$ for arbitrary choice of $f \in R_1$.

*) See for instance ref.[4]), p. 341.

Let λ_i be the eigenvalues of the operators V_t and

$$P_i \equiv F_{\lambda_i + 0} - F_{\lambda_i - 0}$$

the corresponding projection operators. The total projection P corresponding to the subspace M of bound states is then the sum

$$P = \sum_i P_i$$

Since $h \in M$ we have $Ph = h$ and since $h = Pf$ and $[P, F_1] = 0$, we also have

$$F_1 h = F_1 Pf = P F_1 f = Pf = h \tag{16}$$

Thus h is also in the range of Ω_1.

We express now the norm of h in the following manner

$$\| h \|^2 = (h, P h) = (h, \sum P_i h) = (h, \sum P_i F_1 h)$$

$$= (h, \Omega_1 \sum_i (E_{\lambda_i + 0} - E_{\lambda_i - 0}) \Omega_1^* h) \text{ , or finally}$$

$$\| h \|^2 = (\Omega_t^* h , \sum_i (E_{\lambda_i + 0} - E_{\lambda_i - 0}) \Omega_1^* h)$$

The right-hand side is zero, because U_t has a spectral revolution with no discontinuities. Therefore $h = 0$ for all f, or $f \in R$, or finally $R_1 \subset R$, q.e.d.

Literaturverzeichnis

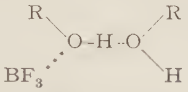
[1]) J. M. Jauch, Helv. Phys. Acta, *31*, 127 (1958).
[2]) H. Ekstein, Phys. Rev. *101*, 880 (1956).
[3]) H. Ekstein, Nuovo Cimento *4*, 1017 (1956).
[4]) See for instance F. Riesz and B. Sz.-Nagy, Functional Analysis, F. Ungar, Publishing Co., New York 1955, p. 201.
[5]) J. v. Neumann, Proc. Nat. Acad. *18*, 70 (1932).
[6]) C. N. Yang and D. Feldman, Phys. Rev. *79*, 972 (1950).
[7]) G. Källèn, Ark. Fys. *2*, 187, 371 (1952).
[8]) H. Lehmann, K. Symanzik, and W. Zimmermann, Nuovo Cim. *1*, 205 (1955).
[9]) See reference [4]), p. 286.

Kernmagnetische Resonanzstudien der Bortrifluoridkomplexbildung

von **P. Diehl**
Physikalisches Institut der Universität Basel

(26. VIII. 58)

Zusammenfassung. Untersuchungen der Verschiebung von OH-Protonenresonanzen als Funktion der BF_3-Konzentration in BF_3-Alkoholkomplexen zeigen die Existenz von Mono- und Dikomplexen und bestätigen die kürzlich für die Dikomplexe vorgeschlagene Struktur:



Zwischen verschiedenen BF_3-Komplexen findet u. a. ein Austausch von BF_3-Gruppen statt. Die Abhängigkeit der Austauschgeschwindigkeit von der BF_3-Konzentration und der Temperatur wird untersucht. Für den Austausch von BF_3 zwischen BF_3CH_3OH und $BF_3C_2H_5OH$ ergibt sich eine Aktivierungsenergie von $7{,}3 \pm 1$ kcal/Mol.

Die chemischen Bestandteile des Systems H_2O–BF_3 werden als die Moleküle HBF_4, HBF_3OH, $HBF_2(OH)_2$ und $HBF(OH)_3$ identifiziert. Zwischen diesen findet ein F-Austausch statt.

Im theoretischen Teil werden explizite Beziehungen zwischen der mittleren Verweilzeit τ eines Kerns in einem Molekül, das sich an einem chemischen Austausch beteiligt, und den aus den Spektren leicht zu entnehmenden Grössen, wie Amplituden, Linienbreiten und Linienverschiebungen, hergeleitet.

1. Einleitung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit dem Einfluss von chemischen Austauschvorgängen auf kernmagnetische Resonanzspektren (NMR-Spektren). In der nachfolgenden Einführung wird deshalb eine kurze Zusammenfassung der wichtigsten Grundbegriffe und Zusammenhänge gegeben, die für das Verständnis der Untersuchung notwendig sind.

1.1. Die Relaxationszeiten

Bei der Herleitung der BLOCHschen Gleichungen[1]), die auf klassischen Überlegungen basieren, stösst man auf Grössen, die sich wohl klassisch begründen lassen, deren Beträge aber nur aus quantentheoretischen

Rechnungen folgen. Es sind dies: T_1, die thermische oder longitudinale Relaxationszeit, und T_2, die transversale Relaxationszeit. Die Bezeichnungen longitudinal und transversal kommen daher, dass T_1 das Verhalten der makroskopischen Magnetisierung einer Probe in einer zum angelegten statischen Magnetfeld H parallelen Richtung beschreibt, während T_2 die entsprechende Aussage über die Magnetisierung senkrecht zu H macht.

T_1 ist eine charakteristische Zeitkonstante für die Abkühlung eines Spinsystems auf die Gittertemperatur infolge Wechselwirkungen mit der Umgebung. (Diese Umgebung wird im festen und flüssigen Zustand als «Gitter» bezeichnet.) Die Spintemperatur ist dabei durch das Boltzmannsche Verteilungsgesetz definiert. Die Besetzungszahl eines Niveaus geht proportional $e^{m_I \mu H / I k T}$ (m = magnetische Quantenzahl; μ = magnetisches Moment; I = Kernspin).

Wird ein Spinsystem, dessen Energieniveaus nach Boltzmann besetzt sind, aus einem Magnetfeld H plötzlich in ein verschiedenes Magnetfeld H' gebracht, so finden Übergänge zwischen den Niveaus statt, und das System nähert sich dem neuen durch H' gegebenen Gleichgewichtszustand exponentiell mit der Zeitkonstante T_1.

T_2 stellt ein Mass für die Aufenthaltsdauer eines Spins in einem Zustand, der durch eine bestimmte Quantenzahl charakterisiert ist, dar, soweit diese Dauer durch reine Spin-Spin Wechselwirkung begrenzt ist. Die Relaxationsvorgänge, die durch T_2 charakterisiert sind, bringen keine Energieänderung des Spinsystems mit sich. Es findet keine Energieübertragung zum Gitter statt.

Klassisch lässt sich T_2 als die Zeit deuten, nach der zwei ursprünglich in Phase präzedierende Kernmomente ihre Phasenbeziehung verlieren.

Jeder Relaxationsprozess, der zu T_1 beiträgt, ändert auch T_2. Die Abkühlung des Spinsystems, die durch Übergänge zwischen den Niveaus stattfindet, bringt einen Verlust der Phasenbeziehung mit sich. Hingegen hat der Verlust der Phasenbeziehung keinen Einfluss auf die Energie, d. h. nicht alle Relaxationsprozesse, die T_2 bestimmen, beeinflussen T_1. Daraus folgt allgemein:

$$T_2 \leqq T_1 .$$

Die Beträge von T_1 und T_2 lassen sich mit Hilfe bestimmter Modellvorstellungen berechnen. Schon kurz nachdem die grundlegenden Arbeiten[1][2]) über die kernmagnetische Resonanz erschienen waren, hat Bloembergen[3]) solche Modelle entwickelt. Er stellt fest, dass in Flüssigkeiten die Brownsche Bewegung für die Relaxationsvorgänge verantwortlich ist. Sie hat zur Folge, dass am Ort eines Kerns ein rasch wechselndes zusätzliches magnetisches Feld, hervorgerufen durch bewegte

Nachbardipole, entsteht. Entwickelt man dieses statistisch sich verändernde Störfeld nach FOURIER, so erhält man ein breites Frequenzband mit einer oberen Grenzfrequenz. Im allgemeinen, d. h. für nicht zu viskose Flüssigkeiten, enthält dieses Frequenzband auch eine Komponente der LARMOR-Frequenz ω_0. Diese Komponente erzeugt Übergänge, gleich wie das eingestrahlte Hochfrequenzfeld, und ermöglicht damit den Wärmekontakt mit dem Gitter.

Wie bereits erwähnt, ist T_2 ein Mass für die Erhaltung einer Phasenbeziehung unter den Kernspins. Befinden sich nun zwei Kerne in verschiedenen Feldern H_0 bzw. H' und besteht ursprünglich eine Phasenbeziehung zwischen den beiden LARMOR-Präzessionen, so geht diese verloren, weil die Präzessionsfrequenzen $\omega_0 = \gamma H_0$ und $\omega' = \gamma H'$ verschieden sind

$$\left(T_2^* = \frac{1}{\omega_0 - \omega'} = \frac{1}{\gamma(H_0 - H')}\right).$$

Auf diese Weise kann die Feldinhomogenität durch eine Relaxationszeit T_2^* ausgedrückt werden, die zusammen mit T_2 und T_1 die Linienbreite beeinflusst. Alle drei Relaxationsprozesse bestimmen die Lebenszeit eines Spinzustandes. Für $I = 1/2$ gilt:

$$\text{Linienbreite } \Delta = \frac{1}{T_2} + \frac{1}{2\,T_1} + \frac{1}{T_2^*}.$$

Der Faktor 1/2 beim Beitrag von T_1 zur Linienbreite ist folgendermassen zu erklären:

Für den Abkühlprozess ist die Differenz der Besetzungszahlen zwischen dem oberen und dem unteren Niveau massgebend. Diese Differenz ändert sich bei jedem Übergang um den Wert 2. Deshalb ist T_1 durch die Beziehung $T_1 = 1/2W$ gegeben (W – mittlere Übergangswahrscheinlichkeit). $W = 1/2T_1$ beschränkt wie $1/T_2$ und $1/T_2^*$ die Lebensdauer eines Zustands und trägt damit zur Linienbreite bei.

Aus der Bemerkung über den Verlust der Phasenbeziehung zwischen präzedierenden magnetischen Momenten durch eine räumliche Feldinhomogenität können weitere Schlüsse über den möglichen Mechanismus des T_2-Relaxationsprozesses gezogen werden. Da nach Ablauf der Zeit T_2^* zwei in verschiedenen Feldern sich befindende Kerne die Phasenbeziehung zwischen ihren Larmorpräzessionen verloren haben, genügt eine gleich grosse lokale zeitliche Feldschwankung der Dauer T_2^*, um die Phasenbeziehung unabhängig von der Feldinhomogenität zu zerstören. Derartige Schwankungen sind in Flüssigkeiten durch die BROWNsche Bewegung von magnetischen Dipolen möglich. Während aus dem FOURIER-Spektrum des Störfelds die Komponente ω_0 der LARMOR-Frequenz für T_1 wesentlich ist, bestimmen die viel langsameren Schwankungen der Frequenz $\omega \leqq 1/T_2$ die Grösse von T_2.

Ähnlich wie die beschriebenen Störungen des Spinsystems durch statistische Feldschwankungen, hervorgerufen durch Nachbardipole, wirken sich z. B. paramagnetische Verunreinigungen in Flüssigkeiten aus.

Besitzen die betrachteten Kerne ein Quadrupolmoment, so ist ein weiterer Relaxationsprozess wegen der Kopplung zwischen Kernquadrupolmoment und statistisch sich verändernden lokalen elektrischen Feldgradienten möglich[4][5].

Kürzlich wurde eine weitere Relaxationsmöglichkeit durch statistische Schwankungen in der Anisotropie der chemischen Abschirmung beschrieben[6].

Eine Anwendung von makroskopisch geordneter Bewegung zur Beeinflussung der NMR-Spektren wird in der sogenannten rotierenden Probe verwirklicht, die das Auflösungsvermögen der NMR-Spektrometer erhöht[7]. Die Funktion dieser rotierenden Probe ist einfach zu verstehen, wenn man sich an den Beitrag einer Feldinhomogenität zur Linienbreite und dessen Zusammenhang mit der Relaxationszeit T_2^* erinnert.

Zwei Kernspins in verschiedenen Feldern verlieren nach Ablauf von T_2^* ihre Phasenbeziehung. Werden sie nun vor diesem Zeitpunkt räumlich vertauscht, dann wird der ursprünglich rascher präzedierende Kern gebremst, der langsamere beschleunigt. Die Phasenbeziehung bleibt erhalten. Der Feldunterschied wirkt sich in der Folge nicht als Linienverbreiterung aus. Beide Kerne verhalten sich, wie wenn sie sich in einem «mittleren» Feld befinden würden. Für die Rotationsfrequenz folgt die Bedingung, dass sie grösser sein muss als die Feldinhomogenität gemessen in Hz (für Protonen entspricht 1 Milligauss etwa 4,26 Hz).

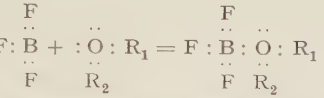
Die hochauflösende kernmagnetische Resonanz gestattet, chemische Austauschvorgänge und innere Bewegungen in Molekülen zu beobachten[8][9]. Es treten in diesem Fall ähnliche Effekte auf wie bei der rotierenden Probe. Allerdings sind die Bewegungen statistisch, so dass eine mittlere Verweilzeit τ in einem Zustand für die Beeinflussung der Spektren massgebend ist. Der Vorteil der NMR-Spektroskopie für das Studium derartiger kinetischer Probleme besteht darin, dass Austauschfrequenzen im Bereich von ca. 1 bis 10^4 Hz in chemischen Gleichgewichten auf einfache Art und Weise gemessen werden können. Solche Austauschvorgänge sind mit andern Mitteln nicht messbar.

1.2. Das Problem der Molekülverbindung

Ähnlich wie die Wasserstoffbrückenbindung stellt die Molekülverbindung ein noch nicht vollständig gelöstes Problem dar. In beiden Fällen wird für eine umfangreiche und unterschiedliche Gruppe von Bindungstypen ein ungenügend festgelegter Begriff verwendet.

Anlagerungsverbindungen können einerseits durch Bindungen über einsame Elektronenpaare, d. h. durch Auffüllung des LEWIS-Oktetts beschrieben werden[11]).

Z.B.



BRIEGLEB[10]) nimmt eine durch rein VAN DER WAALSsche Kräfte bewirkte Bindung an.

Zwischen den extremen Fällen einer kovalenten und einer rein VAN DER WAALSschen Bindung sind kontinuierliche Übergangszustände möglich, die unter dem Begriff «Molekülverbindung» zusammengefasst werden.

1.3. Die BF_3-Molekülverbindungen

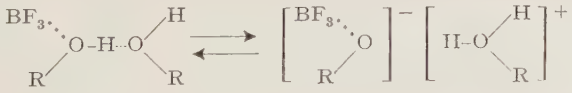
Die in Abschnitt 1.2 gemachten Aussagen lassen sich auf den speziellen Fall der BF_3-Molekülverbindung übertragen. Die Bindung kann man sich folgendermassen vorstellen:



Durch Einfluss des Partnermoleküls wird das ursprünglich ebene BF_3-Molekül deformiert. Das B-Atom rückt aus dem Schwerpunkt der 3 F-Atome heraus. Ein Dipol (in der Figur durch Pfeil angedeutet) entsteht, der das angelagerte Molekül deformieren und polarisieren kann. Eine Alkohol-OH-Gruppe z. B. wird durch BF_3-Anlagerung äusserst reaktionsfähig. Sie bildet infolge eines verstärkten Dipolmomentes bevorzugt Wasserstoffbrücken oder dissoziiert H-Ionen ab. Man erhält eine starke Säure, eine sogenannte Ansolvosäure. Die Erhöhung der Reaktionsfähigkeit durch BF_3-Anlagerung und die Möglichkeit zu einer Polymerisation hat zur Folge, dass nur mit einfacheren Molekülen stabile Molekülverbindungen existieren. So sind z. B. BF_3-Alkoholkomplexe mit sekundären Alkoholen labil und zerfallen u. a. in Olefine und BF_3-Hydrate[11]). Ausgehend von den Olefinen ist in der Folge eine Polymerisation möglich.

Obschon die BF_3-Molekülverbindung schon sehr lange bekannt ist, haben erst neuere Arbeiten einen Einblick in ihre Struktur gegeben.

HEIN[11]) stellt fest, dass die BF_3-Alkoholdikomplexe einerseits angesichts ihrer hohen Acidität als Oxoniumsalze aufzufassen seien. Andererseits deute die Tatsache, dass solche Komplexe flüssig und leicht destillierbar sind, darauf hin, dass ein Gleichgewicht der folgenden Art existiere:



$R = H, CH_3, C_2H_5$ usw.

*

Ausgedehnte elektrochemische Untersuchungen von GREENWOOD und MARTIN[12]) bestätigen diese Auffassung und führen durch Identifizieren der Elektrolysenprodukte zu den folgenden Strukturformeln und durch Leitfähigkeitsmessungen zu den Ionisationsgraden der reinen flüssigen Komplexe

		Ionisationsgrad
BF_3-Monomethanolat	$H^+[BF_3OCH_3]^-$	2,22%
BF_3-Dimethanolat	$[CH_3OH_2]^+[BF_3OCH_3]^-$	7,34%
BF_3-Monohydrat	$H^+[BF_3OH]^-$	10,5 %
BF_3-Dihydrat	$[H_3O]^+[BF_3OH]^-$	17,2 %

Die vorliegenden NMR-Studien befassen sich hauptsächlich mit den stabilen Molekülverbindungen des BF_3 mit Methyl- und Äthyl-Alkohol und mit H_2O. Von allen diesen Komplexen sind zwei Formen bekannt, nämlich die Molekülverbindung von einem BF_3-Molekül mit einem oder mit zwei Partnermolekülen. Allgemein sind die letztgenannten Komplexe stabiler. Sie sind im Vakuum destillierbar, während die 1:1-Komplexe sich zersetzen.

2. Experimentelle Ergebnisse

2.1. Das Spektrometer

Die NMR-Spektren wurden mit Hilfe eines Spektrometers aufgenommen, dessen Magnet von der Firma Varian Associates stammt. Der elektrische Teil wurde selber hergestellt und unterscheidet sich nicht wesentlich von konventionellen Ausführungen. Die Resonanzfrequenz beträgt für *F*- und *H*-Resonanz 34,2 MHz. Die zugehörigen Magnetfelder sind 8040 Gauss für *F* und 8540 Gauss für *H*. Das Auflösungsvermögen der Apparatur ist ungefähr 10^{-7}. Da die durchgeführten Messungen eine Veränderung der Probentemperatur verlangten, wurde in den Messkopf ein Dewargefäss gebracht, das eine genügende Temperaturstabilität und Variabilität ermöglichte. Der Messkopf ist vom BLOCHschen Typ und entspricht im Aufbau einem bereits beschriebenen[13]). Die Messungen der Linienverschiebung werden mit Hilfe einer Tonfrequenz geeicht, die, dem Modulationsfeld überlagert, Seitenbandresonanzen erzeugt. Die Genauigkeit der Messungen beträgt ca. $\pm$ 3 Hz.

2.2. Ergebnisse der Protonenresonanz

Durch die Anlagerung von BF_3-Molekülen an organische Moleküle findet, wie oben beschrieben, eine Polarisierung der Moleküle statt. Die Ladungsverschiebung wird in NMR-Spektren als Linienverschiebung (chemische Verschiebung) sichtbar.

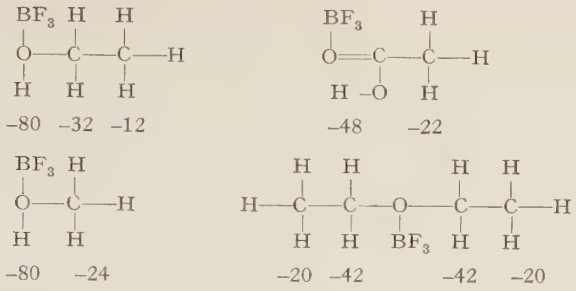


Fig. 1
Relative Verschiebung in Hz von Protonenresonanzen in reinen BF_3-Komplexen. Die angegebenen Verschiebungen sind gegenüber den entsprechenden Resonanzen der nicht substituierten Verbindungen gemessen.

Fig. 1 zeigt einige Fälle von Linienverschiebungen, die infolge einer BF_3-Anlagerung auftreten. Besonders stark macht sich die Ladungsverschiebung bei Atomgruppen bemerkbar, die sich nahe beim angelagerten BF_3-Molekül befinden. Obschon die durch BF_3-Anlagerung induzierten relativen chemischen Verschiebungen der Resonanz der CH_2- und CH_3-Gruppen in Äther grösser sind als in Alkohol, ist doch in beiden Fällen die Differenz der Verschiebung zwischen den beiden Gruppen ungefähr dieselbe. Es findet eine Aufweitung des Abstandes zwischen der CH_2- und CH_3-Linie um ungefähr 20 Hz statt. Dass die polarisierende Wirkung der BF_3-Gruppe sehr stark sein muss, erkennt man daran, dass sie sich über mehrere Glieder eines Moleküls erstrecken kann.

Mischt man BF_3-Ätherat mit Äther, so wird die in Fig. 1 angegebene relative Linienverschiebung proportional der Verdünnung kleiner. Es treten nicht, wie man vielleicht erwarten würde, zwei CH_2-Linien auf, die eine vom Äther im Gemisch und die andere vom BF_3-Ätherat. Diese Tatsache deutet darauf hin, dass in einem derartigen Gemisch Austauschvorgänge stattfinden. Das BF_3-Molekül scheint sich nur kurze Zeit an ein bestimmtes Äthermolekül zu binden. Die Austauschtheorie (siehe Abschnitt 3.1 ff.) zeigt, dass in einem solchen Fall bei genügend raschem Austausch nur eine einzige Resonanzlinie im Schwerpunkt der einzelnen Resonanzen auftritt. Genügend rasch heisst, dass die Aufenthaltszeit τ des BF_3-Moleküls im Komplex kürzer sein muss als der reziproke Wert des Linienabstands multipliziert mit der Grösse $\sqrt{2}$, also $\tau \leq \sqrt{2}/\delta\omega$.

Der gemessene Unterschied in der relativen chemischen Verschiebung der CH_2-Protonenresonanzen von 42 Hz zwischen Äther und BF_3-Ätherat führt zum Schluss, dass ein BF_3-Molekül sich im beschriebenen Komplex bei Zimmertemperatur im Mittel nicht länger als 5×10^{-3} s aufhält, vorausgesetzt, dass nur der BF_3-Austausch für die beobachtete Linienverschiebung bei Verdünnung von BF_3-Ätherat mit Äther verantwort-

lich ist. Während das Protonenspektrum so eine Möglichkeit gibt, eine untere Grenze der Austauschfrequenz festzulegen, gibt erst die Auswertung der Fluor-NMR-Spektren genaue τ-Werte.

Besonders empfindlich auf strukturelle Veränderungen ist die OH-Gruppe. Die starke Verschiebung der OH-Protonenlinie in Abhängigkeit der BF_3-Konzentration erweist sich als auffälligste Erscheinung in den Spektren der BF_3-Komplexe.

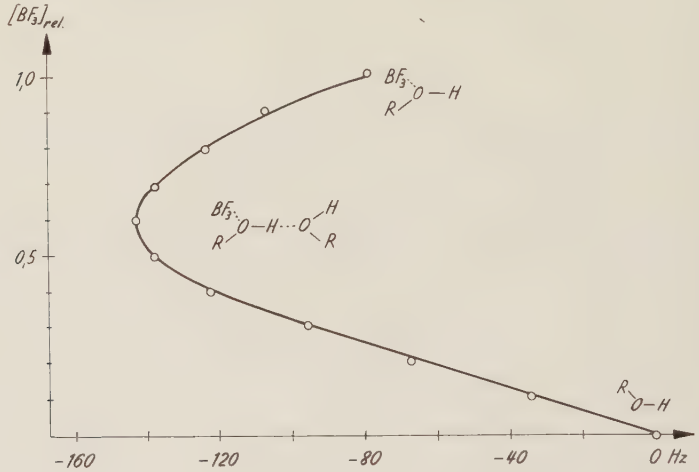


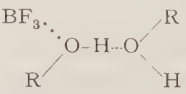
Fig. 2

Verschiebung der OH-Protonenresonanz im System BF_3–C_2H_5OH–CH_3OH als Funktion der BF_3-Konzentration. ($T = 23°C$)

$$[BF_3]_{rel} = \frac{\text{Konzentration von } BF_3}{\text{Konzentration von ROH}} = \frac{[BF_3]}{[ROH]}$$

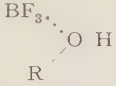
$$\frac{[C_2H_5OH]}{[CH_3OH]} = 1$$

Fig. 2 zeigt die gemessene starke Abhängigkeit der Lage der OH-Protonenresonanz von der BF_3-Konzentration. Analoge Verschiebungen zeigen auch die Alkohole getrennt mit BF_3 progressiv gesättigt. Die maximale Verschiebung liegt allgemein bei ca. — 140 Hz (das Minuszeichen bedeutet abnehmende Abschirmung). Der Gang der OH-Verschiebung wird verständlich, wenn man sich an die Behauptung[11][12]) erinnert, dass zwei Alkohol-BF_3-Komplexe existieren. Bei kleinen Konzentrationen von BF_3 wird hauptsächlich der Komplex $BF_3 \cdot (ROH)_2$ gebildet, der die folgende Struktur aufweist:



Die zwei Alkoholmoleküle sind über eine H-Brücke aneinander gebunden. Bekanntlich bewirkt eine solche eine starke Verschiebung der OH-

Protonenresonanz in Richtung kleinerer Abschirmung. Aus der Fig. 2 ist weiter ersichtlich, dass nur eine einzige OH-Linie auftritt. Das bedeutet, dass auch die Protonen, die die Brücke bilden, in raschem Austausch mit den Alkohol OH-Protonen stehen. Wird die BF_3-Konzentration erhöht, so verschiebt sich die OH-Linie bis zu einer maximalen Verschiebung. Dieser Punkt entspricht ungefähr dem Mischungsverhältnis von einem Molekül BF_3 auf zwei Moleküle Alkohol. Das Gemisch besteht somit hauptsächlich aus dem oben beschriebenen Dialkoholat. Eine weitere BF_3-Anlagerung ist nur dadurch möglich, dass Wasserstoffbrücken aufgebrochen werden und sich BF_3 an das freiwerdende Alkoholmolekül bindet. Dabei entsteht in zunehmendem Mass das Monoalkoholat



Die relative BF_3-Konzentration 1 (siehe Text-Fig. 2) entspricht dem reinen Monokomplex.

Die Methyl- und Äthylprotonenresonanzen verschieben sich im ganzen Konzentrationsbereich linear mit der Konzentration $[BF_3]_{rel}$. Dies bedeutet, dass sämtliches BF_3-Gas, das in das Gemisch eingeleitet wird, sich an Alkoholmoleküle anlagert und nicht etwa, wie man vielleicht vermuten könnte, bei hoher BF_3-Konzentration sich als freies BF_3 in Lösung befindet. Während diese Beobachtung die Existenz des Monokomplexes beweist, bestätigt die OH-Verschiebung (Fig. 2) die Deutung der Komplexstrukturen durch Hein, Greenwood und Martin[11])[12]).

Aus den beiden markanten Punkten der Fig. 2, dem Extremalpunkt und dem Endpunkt der Verschiebung für $[BF_3]_{rel} = 1$, können wir weitere Schlüsse ziehen. Im Extremalpunkt liegt die reine Verbindung $BF_3 \cdot (ROH)_2$ vor, d. h. der beschriebene Protonenaustausch findet zwischen gleichen Konzentrationen von Brückenprotonen und Endprotonen statt. Da die gemessene Verschiebung allgemein dem Schwerpunkt der Resonanzlinien (Abschnitt 3.1) entsprechen muss, folgt, vorausgesetzt, dass die Lage der Resonanzlinie des nicht direkt mit BF_3 verbundenen Endprotons gegenüber der Lage in reinem flüssigen Alkohol nicht verschoben ist, für die Brückenprotonenresonanzlinie eine chemische Verschiebung von -280 Hz. Aus dieser Zahl lässt sich eine obere Grenze der mittleren Protonenverweilzeit in der H-Brücke von $8 \cdot 10^{-4}$ s abschätzen.

Die Verschiebung der OH-Resonanz von -80 Hz im Punkt $[BF_3)_{rel} = 1$ (Fig. 2) zeigt, dass schon allein die Anlagerung von BF_3 eine stark polarisierende Wirkung auf die Ladungswolke der OH-Gruppe ausübt. Man sieht hier deutlich den bekannten Säurecharakter der BF_3-substi-

tuierten Alkohole. Die OH-Resonanz von reinem $BF_3 \cdot CH_3OH$ liegt z. B. gleich weit nach tieferem Feld verschoben wie die H-Resonanz von konzentrierter Salzsäure.

2.3. Die Fluorresonanz

Das Studium der BF_3-Molekülverbindung mit Hilfe der F-Resonanz wird dadurch möglich, dass die Fluorresonanzen der Molekülgruppe BF_3 Unterschiede in der chemischen Abschirmung zeigen. Solche Unterschiede sind allerdings zu erwarten, denn, wie bereits beschrieben, deformiert sich das BF_3-Molekül bei einer Anlagerung. Chemische Verschiebungen im Fall der F-Resonanz sind sehr grobe Effekte. Im Durchschnitt sind sie 100mal stärker als bei Protonenresonanzen. Die folgende Zusammenstellung zeigt einige Messwerte von chemischen Verschiebungen der F-Resonanz in BF_3-Komplexen:

$CH_3OH\ BF_3$	+117 Hz
$(C_2H_5)_2O\ BF_3$	+ 65 Hz
$C_2H_5OH\ BF_3$	+ 10 Hz
$(BF_4)^-$	0
$(H_2O)_2\ BF_3$	− 90 Hz
$CH_3COOH\ BF_3$	−106 Hz

Die NMR-Spektroskopie gibt eine Möglichkeit, rasch und auf einfache Art festzustellen, ob BF_3 mit einem bestimmten Stoff einen Komplex bildet. Die Zuordnung einer Linie zu einem bestimmten Komplex in einem Gemisch kann z. B. durch Vergleich des Spektrums mit demjenigen der reinen Komplexe geschehen. Eine weitere Möglichkeit ist durch Konzentrationsänderung der im Gemisch vorkommenden Substanzen gegeben. Dabei treten entsprechende Änderungen der relativen Amplituden auf.

Die NMR-Fluorspektren aller BF_3-Komplexe zeigen eine starke Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit. Beispiele für dieses Verhalten sind in Fig. 3 und Fig. 4 dargestellt.

In beiden Figuren ist ersichtlich, dass zwei Resonanzlinien mit steigender Temperatur, bzw. Konzentration, unscharf werden und schliesslich zusammenfallen.

Im theoretischen Teil der vorliegenden Arbeit wird gezeigt, dass derartige Veränderungen eines NMR-Spektrums durch chemische Austauschvorgänge bedingt sind und in welcher Weise die mittlere Aufenthaltsdauer τ eines Kerns in einer bestimmten Umgebung durch Messung von Linienbreiten, Linienverschiebungen und Amplituden bestimmt werden kann.

Mit den dort angegebenen Verfahren wurden aus den Fig. 3 und 4 sowie aus andern Spektren die τ-Werte ermittelt, die in Fig. 5a und 5b enthalten sind.

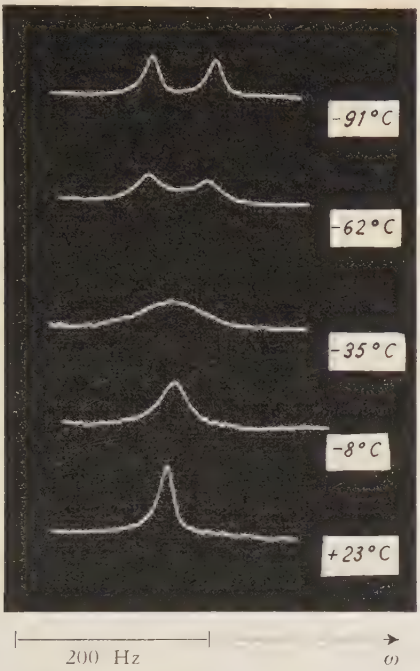


Fig. 3
Einfluss der Temperatur auf das F-Spektrum einer Mischung der Monokomplexe BF_3CH_3OH und $BF_3C_2H_5OH$. $[BF_3]_{rel} = 1$.

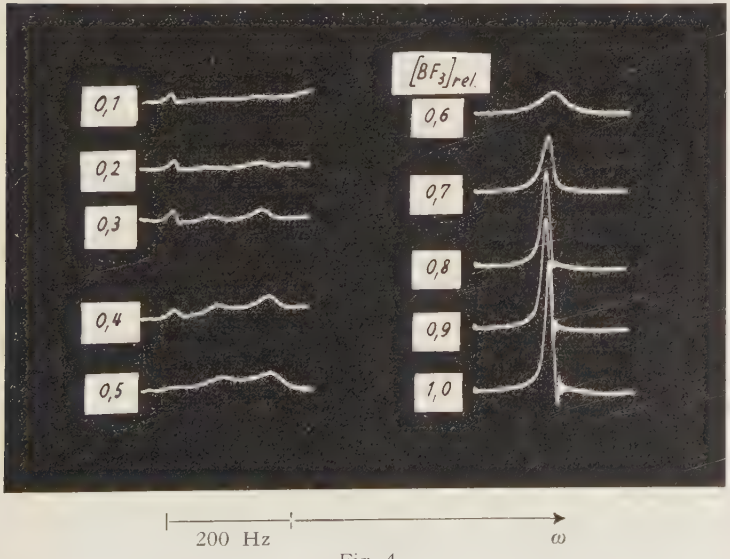


Fig. 4
Veränderung des F-Spektrums des Systems BF_3–CH_3OH-C_2H_5OH als Funktion der BF_3-Konzentration. (Die im Fall $[BF_3]_{rel} = 0{,}1$ sichtbare Linie entspricht einer BF_3-Anlagerung an H_2O, das in der Probe als Verunreinigung vorhanden ist.)

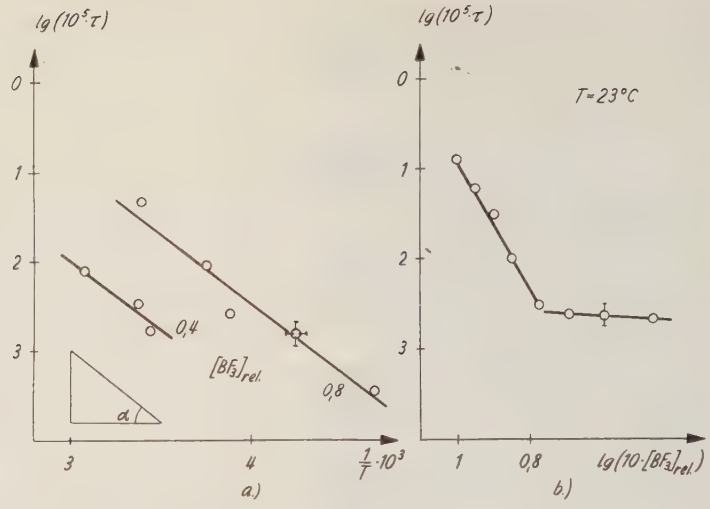


Fig. 5
Veränderung der mittleren Verweilzeit im System BF_3-CH_3OH–C_2H_5OH.
a) als Funktion der Temperatur.
b) als Funktion der Konzentration $[BF_3]_{rel}$.

Aus der Temperaturabhängigkeit von τ (Fig. 5a) lässt sich die Aktivierungsenergie des die Austauschgeschwindigkeit bestimmenden Vorgangs wie folgt ermitteln:

In der Reaktionskinetik gilt allgemein:

Reaktionskonstante $k = k_0 \cdot e^{-Ea/RT}$.

(R = Gaskonstante
k_0 = max. Geschwindigkeitskonstante)

Andererseits hängt die Reaktionskonstante von der mittleren Verweilzeit τ, der Reaktionsordnung N und der Konzentration K folgendermassen ab:

$$k = \frac{1}{\tau \cdot K^{(N-1)}}$$

(K = Konzentration in Mol/Volumen).

Aus diesen beiden Gleichungen erhalten wir nach Division durch den Abstand $\delta\omega$ der beiden Linien, zwischen denen der Austausch stattfindet, die Beziehung:

$$\log_{10}\left(\frac{1}{\delta\omega\tau}\right) = \log_{10}\left(\frac{k_0}{\delta\omega} \cdot K^{(N-1)}\right) - \frac{E_a}{2{,}3\,RT}.$$

Tragen wir also $\log_{10}(1/\delta\omega\tau)$ als Funktion von $1/T$ auf, so erhalten wir eine Gerade. Ihre Steigung ist durch den Tangens des Neigungswinkels α bestimmt.

$$|\operatorname{tg}\alpha| = \frac{\Delta[\log_{10}(\delta\omega \cdot \tau)]}{\Delta\,(1/T)} = \frac{E_a}{2{,}3\,R}$$

Für E_a folgt

$$E_a = \frac{2{,}3\, R \cdot \Delta[\log_{10}(\delta\omega\tau)]}{\Delta(1/T)} = \frac{4{,}57\, \Delta[\log_{10}(\delta\omega \cdot \tau)]}{\Delta(1/T)} \cdot 10^{-3}\,\text{kcal/Mol}$$

Wir finden aus Fig. 5 für $[BF_3]_{rel} = 0{,}8$ die der Temperaturänderung $\Delta(1/T) = 0{,}5 \cdot 10^{-3}$ entsprechende Grösse $\Delta(\log_{10} \cdot \tau)$ von 0,8. Daraus folgt der Wert der Aktivierungsenergie

$$E_a = 7{,}3 \pm 1\,\text{kcal/Mol}.$$

Der entsprechende Wert von E_a für $[BF_3]_{rel} = 0{,}4$ wird, allerdings innerhalb grösserer Fehlerschranken, gleich.

Die Abhängigkeit von τ von der BF_3-Konzentration (Fig. 5b) zeigt einen fast konstanten Wert von τ für $[BF_3]_{rel} < 0{,}5$ und eine rasche Abnahme von τ für wachsende Konzentration, sobald $[BF_3]_{rel} > 0{,}5$.

Es bleibt die Frage nach der Art des Austausches zu beantworten, der die Veränderung der Spektren als Funktion der Temperatur und der Konzentration bewirkt.

Aus den F-Spektren folgt vorerst nur das Vorhandensein eines F-Austausches. Dieser Prozess kann durch Abdissoziieren von F^--Ionen aus BF_3-Gruppen ablaufen. Er ist aus chemischen Gründen nicht völlig ausgeschlossen, vermag aber die Feststellung nicht zu deuten, dass z. B. das Protonen-Spektrum des BF_3-Dimethanolats nur eine einzige CH_3-Linie zeigt, obschon dieser Komplex zwei nicht strukturäquivalente Methyl-Gruppen enthält. Während ein F-Austausch für die Erklärung dieser Beobachtung nicht in Frage kommt, bleiben zwei Möglichkeiten offen, der Austausch der CH_3- oder der BF_3-Gruppen. Chemisch wahrscheinlicher ist der zweite.

Ausgehend von der Hypothese eines BF_3-Austausches kann der Mechanismus, insbesondere dessen geschwindigkeitsbestimmender langsamster Teilschritt untersucht werden. Die Abhängigkeit der Verweilzeit τ von der BF_3-Konzentration, welche in Fig. 4 dargestellt und in Fig. 5b ausgewertet ist, gibt, wenn auch nicht die Lösung dieses Problems, so doch einige Hinweise:

Im Konzentrationsbereich $[BF_3]_{rel} < 0{,}5$ ist τ nur schwach konzentrationsabhängig. Ein möglicher Grund dafür ist das Vorhandensein eines zwischenmolekularen BF_3-Austausches

$$BF_3 \cdot (R_1OH)\,(R_2OH) + (R_2OH)^* \rightleftarrows BF_3 \cdot (R_2OH)^* \cdot (R_1OH) + (R_2OH)$$

oder eines innermolekularen Austausches

$$BF_3\ (R_1OH)\,(R_2OH) \rightleftarrows BF_3\,(R_2OH)\,(R_1OH).$$

Wie die folgende Beobachtung zeigt, sind derartige Austausche zur Deutung der Protonen- und Fluorspektren wohl notwendige, aber nicht

hinreichende Hypothesen. Die aus dem F-Spektrum eines Gemischs gleicher Konzentration von $(CH_3OH)_2 \cdot BF_3$ und $(C_2H_5OH)_2 \cdot BF_3$ bei $-50°C$ gemessene mittlere Verweilzeit $\tau = 2{,}8 \cdot 10^{-2}$ s der BF_3-Gruppe in einem Komplex sollte im Protonenspektrum zu einer starken Verbreiterung der Methyl- und Äthyl-Resonanzen führen. Diese Verbreiterung tritt nicht auf. Wir müssen deshalb annehmen, dass sich im System ausser einer BF_3- noch weitere Austauschreaktionen abspielen.

Im Konzentrationsbereich $[BF_3]_{rel} > 0{,}5$ nimmt die Austauschgeschwindigkeit mit wachsender Konzentration stark zu. τ ändert sich ungefähr proportional $1/[BF_3]^5_{rel}$. Da für $[BF_3]_{rel} = 0{,}4$ die gleiche Aktivierungsenergie gemessen wurde wie für $[BF_3]_{rel} = 0{,}8$, lässt sich aus der Konzentrationsabhängigkeit schliessen, dass der für den Austausch wichtige chemische Zustand bei $[BF_3]_{rel} < 0{,}5$ in nahezu konstanter und kleiner Konzentration vorkommt, während er im Falle von $[BF_3]_{rel} > 0{,}5$ an Konzentration zunimmt. Diese Eigenschaft trifft für den Monokomplex $ROH \cdot BF_3$ zu, der auch, wie bereits erwähnt, labiler ist als der Dikomplex. Nicht verständlich ist allerdings die ausserordentlich starke Abhängigkeit der Verweilzeit von der Konzentration $[BF_3]_{rel}$.

Zusammenfassend kann gefolgert werden, dass ein BF_3-Austausch die Möglichkeit einer gleichzeitigen Beeinflussung der Protonen- und der Fluorresonanz qualitativ erklärt, hingegen deutet der erwähnte quantitative Widerspruch darauf hin, dass ausser dem BF_3-Austausch weitere Austauschvorgänge, vermutlich Protonenaustausch, stattfinden. Das untersuchte System weist deshalb einen verwickelten Ablauf der Reaktionen auf, deren Zusammenhänge und Reihenfolge auf Grund der vorliegenden Ergebnisse noch nicht gedeutet werden können.

2.4. Das System Bortrifluorid–Wasser

2.41. Chemischer Reaktionsverlauf

Auf Grund von reaktionskinetischen Studien beschreibt WAMSER[14]) den Reaktionsverlauf, der sich bei Einleiten von BF_3-Gas in Wasser abspielt, folgendermassen:

(1) $BF_3 + H_2O \rightleftharpoons HBF_3(OH)$ (sehr rasch)

(2) $HBF_3OH + H_2O \rightleftharpoons HBF_2(OH)_2 + HF$ (rasch)

(3) $HBF_2(OH)_2 + H_2O \rightleftharpoons HBF(OH)_3 + HF$ (rasch)

(4) $HBF(OH)_3 \rightleftharpoons B(OH)_3 + HF$ (rasch)

(5) $HBF_3OH + HF \rightleftharpoons HBF_4 + H_2O$ (langsam)

Während es WAMSER gelang, HBF_4 zu isolieren, war es nicht möglich, HBF_3OH von den Hydrolysen-Folgeprodukten zu trennen, da das Gleichgewicht sich zu rasch einstellt. Insbesondere ist es noch nie gelungen, die Säure $HBF(OH)_3$ zu isolieren und nachzuweisen.

2.42. Die NMR-Untersuchung des Systems

Bei fortschreitendem Sättigen von Wasser mit BF_3-Gas weisen die NMR-Spektren starke Veränderungen auf (Fig. 6).

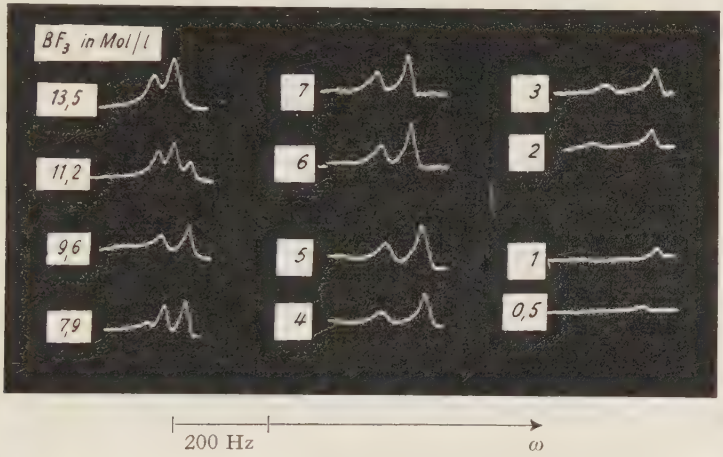


Fig. 6
Veränderung des F-Spektrums im System H_2O–BF_3 als Funktion der BF_3-Konzentration.
Temperatur für $[BF_3] > 7$ Mol/l $T = 0°$ bis $T = -30°C$
Temperatur für $[BF_3] < 7$ Mol/l $T = 0°$ bis $T = +23°C$

Es stellt sich die Frage, ob die in Fig. 6 sichtbaren Resonanzlinien mit Hilfe der kernmagnetischen Resonanz mit bestimmten chemischen Substanzen identifiziert werden können, und ob es möglich ist, auf diese Art den von WAMSER dargestellten Reaktionsverlauf zu bestätigen.

Eine provisorische Zuordnung der Linien zu den hypothetischen Verbindungen HBF_3OH, $HBF_2(OH)_2$, $HBF(OH)_3$ und HBF_4 kann durch chemische Teste gemacht werden. So z. B. bewirkt eine Zugabe von HF eine Verschiebung des Reaktionsgleichgewichtes (Reaktion (5)) und in der Folge ein Anwachsen einer bestimmten Linie im NMR-Spektrum. Diese Linie identifizieren wir vorläufig als Resonanz der Substanz HBF_4. Zugabe von Base verstärkt die Hydrolysenprodukte (Reaktionen (2) bis (4)), es erscheint eine in Fig. 6 nicht sichtbare vierte Linie der Substanz $HBF(OH)_3$, die im ungestörten H_2O–BF_3-System nur in sehr geringer Konzentration vorkommt. Bei hoher BF_3-Konzentration tritt haupt-

sächlich eine Resonanz auf, die wir dem $HBF_3(OH)$-Molekül zuordnen (Reaktion (1)).

Relative Lage der F-Resonanzen der im System H_2O-BF_3 vorkommenden Substanzen bei der Konzentration $[BF_3] = 10$ Mol/l

HBF_4	0
$HBF_3(OH)$	– 42 Hz
$HBF_2(OH)_2$	– 65 Hz
$HBF(OH)_3$	– 90 Hz

Eine Bestätigung dieser vorläufigen Zuordnung der Linien ist mit Hilfe der Arbeit von WAMSER möglich, da in dieser die relativen Konzentrationen der einzelnen Substanzen als Funktion der BF_3-Konzentration angegeben sind.

Fig. 7 zeigt die von WAMSER gemessenen Konzentrationen verglichen mit Werten, die aus den NMR-Spektren durch graphische Integration der Flächen unter Berücksichtigung der Zahl der F-Atome pro Molekül abgelesen sind. Die gute Übereinstimmung beider Messungen bestätigt die Richtigkeit der Linienzuordnung und gleichzeitig den von WAMSER vorgeschlagenen Reaktionsverlauf. Die Unterschiede in der HBF_4-Konzentration für $[BF_3] > 7$ Mol/l können damit in Zusammenhang gebracht werden, dass diese NMR-Spektren bei tiefer Temperatur (0°C bis – 30°C) aufgenommen, während die von WAMSER angegebenen Werte bei + 25°C bestimmt wurden.

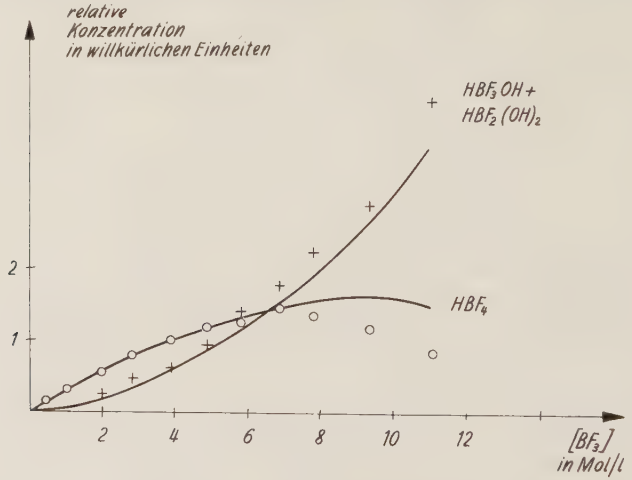


Fig. 7

Relative Konzentrationen der Moleküle HBF_4 und der Summe von HBF_3OH und $HBF_2(OH)_2$ im System H_2O-BF_3 als Funktion der Konzentration des eingeleiteten BF_3-Gases.

Ausgezogene Kurven: Messwerte von WAMSER[14])

○, + = Messpunkte aus NMR-Spektren.

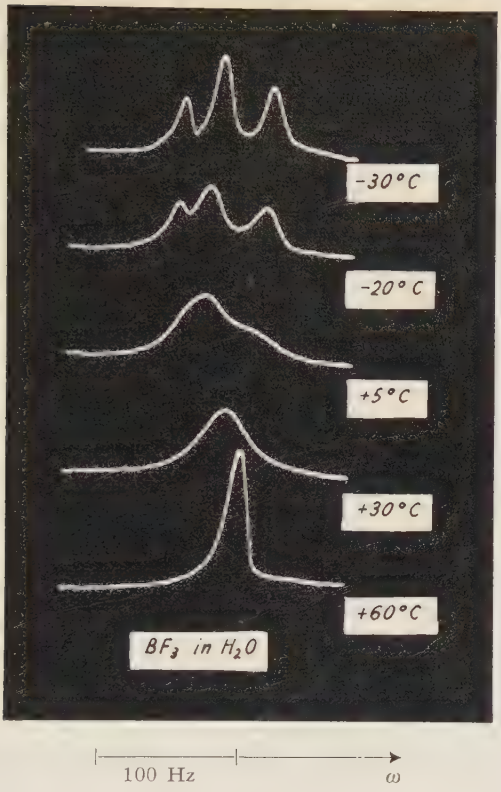


Fig. 8
Veränderung der Fluorresonanz im System BF_3–H_2O als Funktion der Temperatur. $[BF_3] = 11{,}2$ Mol/l.

Wie aus Fig. 8 ersichtlich ist, kann nur bei $T < +5°C$ eine Zuordnung der Resonanzlinien zu bestimmten Substanzen gemacht werden. Dieses Verhalten ist typisch für einen chemischen Austauschvorgang, wie er in der vorliegenden Arbeit schon mehrfach erwähnt worden ist. Zwischen den Molekülen $HBF_3(OH)$, $HBF_2(OH)_2$, $HBF(OH)_3$ und HBF_4 findet ein F-Austausch statt.

Die Auswertung der Spektren, d. h. die Bestimmung von τ als Funktion der Temperatur ergibt den Wert der Aktivierungsenergie des geschwindigkeitsbestimmenden Reaktionsschrittes. Da bei kleiner BF_3-Konzentration die Austauschgeschwindigkeit stark abnimmt und auch bei hoher Temperatur mit Hilfe der kernmagnetischen Resonanz nicht mehr gemessen werden kann, wird der Austausch von F zwischen HBF_4 und HBF_3OH bei hoher BF_3-Konzentration untersucht. Die Messresultate sind in Fig. 9 dargestellt.

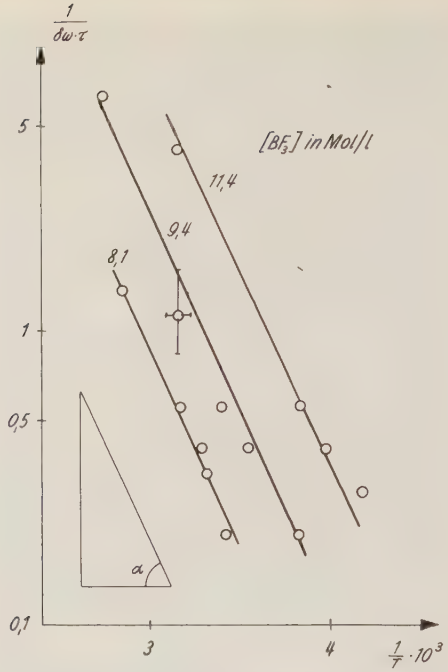


Fig. 9

Mittlere Verweilzeit τ eines F-Atoms gemessen im System H_2O–BF_3 als Funktion der Temperatur und der Konzentration $[BF_3]$ in Mol/l.

Aus der Steigung der Geraden in Fig. 9, die für alle untersuchten Konzentrationen von BF_3 parallel verlaufen, folgt der Betrag der Aktivierungsenergie:

$$E_a = 7{,}1 \pm 1 \text{ kcal/Mol}.$$

Der Mechanismus des F-Austausches ist auch in diesem System verwickelt. Man könnte vermuten, dass er durch die erwähnten Reaktionen (1) bis (5) zustande kommt. Unverständlich ist allerdings die starke Abhängigkeit der Verweilzeit von der BF_3-Konzentration. Aus Fig. 9 kann abgelesen werden, dass bei konstanter Temperatur im Konzentrationsbereich 7,9 bis 11,2 Mol/l τ sich proportional $1/[BF_3]^4$ verändert. Auch in diesem System sind die vorliegenden Ergebnisse nicht ausreichend zur Aufklärung des Austauschmechanismus.

3. Einfluss chemischer Austauschvorgänge auf Linien von kernmagnetischen Resonanzspektren

In den vorangehenden Abschnitten wurde wiederholt die Aufenthaltsdauer τ eines Kerns in einer bestimmten chemischen Umgebung aus der Form der Kernresonanzsignale ermittelt. In diesem Kapitel soll nun angegeben werden, wie dies durchgeführt wurde.

Die grundlegenden Theorien über den Einfluss von Austauschvorgängen auf die Form der Kernresonanzsignale[8)15)16)19)] geben gewöhnlich keine expliziten Beziehungen zwischen τ und den aus den Spektren leicht zu entnehmenden Grössen wie Amplituden, Linienbreiten und Linienverschiebungen. Da jedoch solche Beziehungen für die praktische Anwendung eine unentbehrliche Stütze bedeuten, haben wir sie im folgenden aus den recht verwickelten Gleichungen der allgemeinen Theorie unter Voraussetzung gewisser Näherungsbedingungen hergeleitet.

Vor dieser Herleitung sollen im Abschnitt 3.1 kurz die Austauschtheorie sowie einige später verwendete Begriffe angegeben werden.

3.1. Die Austauschtheorie

Der chemische Austausch besteht physikalisch gesehen in statistisch verteilten, sprunghaften Übergängen der betrachteten Kerne zwischen Zuständen mit verschiedener Umgebung. Verschiedene Umgebung bedeutet, dass jeder Zustand durch eine spezifische chemische Verschiebung und eine transversale Relaxationszeit charakterisiert ist. Man hat sich einen derartigen Austauschvorgang bei Beschränkung auf nur zwei Zustände reaktionskinetisch folgendermassen vorzustellen:

$$A^* + B \xrightarrow{k} A + B^* .$$

Die zeitlichen Änderungen der Konzentration von A und B sind dann:

$$-\frac{d[A]}{dt} = -\frac{d[B]}{dt} = k[A][B] ,$$

woraus für die Lebenszeit der einzelnen Zustände folgt:

$$\tau_A = \frac{[A]}{-\frac{d[A]}{dt}} = \frac{1}{k \cdot [B]} ; \quad \tau_B = \frac{[B]}{-\frac{d[B]}{dt}} = \frac{1}{k[A]} .$$

Als mittlere Lebenszeit definieren wir:

$$\tau = \frac{\tau_A \cdot \tau_B}{\tau_A + \tau_B} .$$

Dann erhalten wir mit den Konzentrationsbezeichnungen

$$p_A = \frac{[A]}{[A]+[B]} \quad \text{und} \quad p_B = \frac{[B]}{[A]+[B]}$$

die folgende Beziehung zwischen Lebenszeit und Konzentration:

$$\tau_A = \frac{\tau}{p_B} ; \quad \tau_B = \frac{\tau}{p_A} .$$

Nun stellt sich die Frage, wie dieser Austauschprozess in die die NMR-Signale beschreibenden BLOCH-Gleichungen einzubauen ist. Eine beson-

ders elegante Lösung dieses Problems hat McConnell[19]) gefunden. Sie soll am Beispiel der transversalen Magnetisierungskomponente u erläutert werden. Diese stammt einerseits von den Kernen im Zustand A, andererseits von denjenigen im Zustand B. Ohne Austausch von Kernen zwischen A und B wird das Verhalten der Komponente u_A durch die Bloch-Gleichung[1])

$$\dot{u}_A + \Delta\omega_A v_A = -\frac{u_A}{T_2}$$

beschrieben. (u, v, w = Komponenten der Magnetisierung in einem kartesischen Koordinatensystem, das mit der Winkelgeschwindigkeit $\omega_0 = \gamma H_0$ um die H_0-Achse rotiert.)

In dieser Gleichung wird der Einfluss der Relaxation durch den Term $-u_A/T_2$ beschrieben.

Findet nun ein Austauschprozess statt, so wird der Anteil der Magnetisierung, der vom Zustand A bzw. B herrührt, geändert. Dieser Prozess kann durch zusätzliche Relaxationsterme in den Bloch-Gleichungen berücksichtigt werden.

$$\dot{u}_A + \Delta\omega_A v_A = -\frac{u_A}{T_2} - \frac{u_A}{\tau_A} + \frac{u_B}{\tau_B}$$

Aus dem durch Zusatzterme erweiterten Blochschen Gleichungssystem erhalten wir unter speziellen Annahmen eine besonders einfache Lösung. Vorausgesetzt wird, dass die sogenannte «Slow-Passage-Bedingung» erfüllt ist, d. h. die Zeit, während der das Feld H_0 sich durch Modulation um eine Linienbreite verändert, muss länger sein als der reziproke Wert der Linienbreite gemessen in Hz. Ferner soll das eingestrahlte magnetische Hochfrequenzfeld so schwach sein, dass keine Sättigung auftritt. Diese Bedingung ist erfüllt, solange die Amplitude des eingestrahlten magnetischen Hochfrequenzfeldes kleiner ist als die in gleichen Einheiten gemessene Linienbreite.

Man findet unter diesen Voraussetzungen für die totale transversale Magnetisierung M des Systems, in dem sich Austauschvorgänge abspielen:

$$M = U + iV = -\gamma H_1 M_0 \frac{\sum_K \frac{p_K}{1/T_K' + i\Delta\omega_K}}{\sum_K p_K \frac{1/T_{2K} + i\Delta\omega_K}{1/T_K' + i\Delta\omega_K}} . \qquad (1)$$

Die Bedeutung der verwendeten Symbole ist die folgende:

$$\frac{1}{T_K'} = \frac{1}{\tau} + \frac{1}{T_{2K}}$$

γ = gyromagnetisches Verhältnis
H_1 = magnetische Hochfrequenzamplitude
M_0 = statische Magnetisierung im thermischen Gleichgewicht.

Im Fall von zwei Zuständen A und B, deren Unterschied in der chemischen Verschiebung $\delta\omega$ beträgt, haben die Grössen $\Delta\omega_K$ die Bedeutung:

$$\Delta\omega_A = \Delta\omega + \frac{\delta\omega}{2}$$

$$\Delta\omega_B = \Delta\omega - \frac{\delta\omega}{2}$$

Damit ist der Nullpunkt der Frequenzvariablen $\Delta\omega$ an die Stelle

$$\Delta\omega_A - \frac{\delta\omega}{2} = \Delta\omega_B + \frac{\delta\omega}{2}$$

gelegt. Er befindet sich auf halbem Abstand zwischen den Frequenzen ω_A und ω_B, den Resonanzfrequenzen der Zustände A und B.

Machen wir noch die vereinfachende Voraussetzung, dass

$$T_{2A} = T_{2B} = T_2, \quad \text{d.h.} \quad T_A' = T_B' = T',$$

so erhalten wir die einfache Form der meistens beobachteten Absorptionslinie:

$$V = + \frac{AC + BD}{C^2 + D^2}$$

mit:

$$A = -\gamma H_1 M_0 T_2 = \beta \tag{2}$$

$$B = -\beta\left[\Delta\omega + \frac{\delta\omega}{2}(p_B - p_A)\right]T'$$

$$C = 1 - \left(\Delta\omega^2 - \frac{\delta\omega^2}{4}\right)T_2 T'$$

$$D = \Delta\omega(T_2 + T') + (p_B - p_A)(T' - T_2)\frac{\delta\omega}{2}.$$

3.2. Die Berechnung von Amplituden, Linienverschiebungen und Linienbreiten

Die Gleichung (2) beschreibt die Linienform des NMR-Spektrums als Funktion von $\Delta\omega$ mit den Parametern $\delta\omega \cdot \tau$ und $\delta\omega \cdot T_2$. Variiert man den Parameter $\delta\omega \cdot \tau$ z. B. durch Temperaturveränderung, so finden charakteristische Veränderungen des Spektrums statt, wie sie in Fig. 2 dargestellt sind:

Bei grossem τ besteht das Spektrum aus zwei Resonanzlinien an den Stellen $\Delta\omega = \pm\, \delta\omega/2$. Diese Linien wollen wir als Aussenlinien mit den

*

Amplituden V_E bezeichnen. Mit abnehmendem τ werden die Resonanzen flacher; gleichzeitig wird ihr Abstand $\delta\omega_E$ kleiner. Für $\tau \sim 1/\delta\omega$ erscheint eine einzige breite Resonanz an der Stelle $\Delta\omega = \delta\omega \cdot (p_A - p_B)/2$, die wir im übertragenen Sinn als Schwerpunkt der Aussenlinien bezeichnen. Diese sogenannte Zentrallinie mit der Amplitude V_Z wird für weiter abnehmendes τ wieder schmäler.

Die quantitative Beschreibung dieser Veränderungen, die im folgenden durchgeführt wird, soll uns ermöglichen, die Grösse τ aus leicht messbaren Grössen wie z. B. Amplituden, Linienbreiten und Linienverschiebungen abzuleiten.

3.21. Die Amplituden der Aussen- und der Zentrallinien V_E und V_Z

Durch Einsetzen von $\Delta\omega = \pm\,\delta\omega/2$, bzw. $\Delta\omega = \delta\omega \cdot (p_A - p_B)/2$ erhalten wir aus Gleichung (2) die Amplituden der Aussen- und der Zentrallinien, vorausgesetzt, dass keine Linienverschiebung stattfindet (Abschnitt 3.22).

Unter der Näherungsbedingung, dass erstens die Aussenlinien nicht überlappen und zweitens die Konzentrationen der beiden Zustände p_A und p_B nicht zu grosse Verschiedenheit aufweisen, folgt:

Näherungsbedingungen:

$$V_{E_A} = \beta \cdot \frac{(1-p_B)}{1+\dfrac{p_B\,\delta\omega \cdot T_2}{\delta\omega \cdot \tau}}\,; \qquad (3)$$

$$V_{E_B} = \beta \cdot \frac{(1-p_A)}{1+\dfrac{p_A\,\delta\omega \cdot T_2}{\delta\omega \cdot \tau}}\,; \qquad \left[\frac{\delta\omega}{2} \gg \frac{1}{T'}\right] \qquad \left[\delta\omega \cdot T_2 \gg \frac{1}{p_A p_B}\right].$$

$$V_Z = \beta \cdot \frac{1}{1+p_A p_B(\delta\omega\cdot\tau)\,(\delta\omega \cdot T_2)}\,; \qquad \left[\frac{\delta\omega \cdot T_2}{\delta\omega\cdot\tau} \ll 1\right]$$

In Fig. 10 und 11 sind die Beziehungen (3) für $p_A = p_B$ und $p_A \neq p_B$ mit zwei verschiedenen Parameterwerten von $\delta\omega \cdot T_2$ dargestellt.

Aus den Formeln (3) ist ersichtlich, dass die Grössen $\delta\omega \cdot T_2$ und $\delta\omega \cdot \tau$ in V_E als Quotient $\delta\omega \cdot T_2/\delta\omega \cdot \tau$ und in V_Z als Produkt $(\delta\omega \cdot T_2)\ (\delta\omega \cdot \tau)$ vorkommen. Eine Vergrösserung des Parameters $\delta\omega \cdot T_2$ wirkt sich auf V_E gleich wie eine Verkleinerung von $\delta\omega \cdot \tau$, auf V_Z wie eine Vergrösserung von $\delta\omega \cdot \tau$ um denselben Faktor aus. Die Darstellungen in Fig. 10 und Fig. 11 lassen sich also durch einfaches Parallelverschieben auf beliebige Werte des Parameters $\delta\omega \cdot T_2$ erweitern, solange die Näherungsbedingung $\delta\omega/2 \gg 1/T'$ nicht verletzt wird.

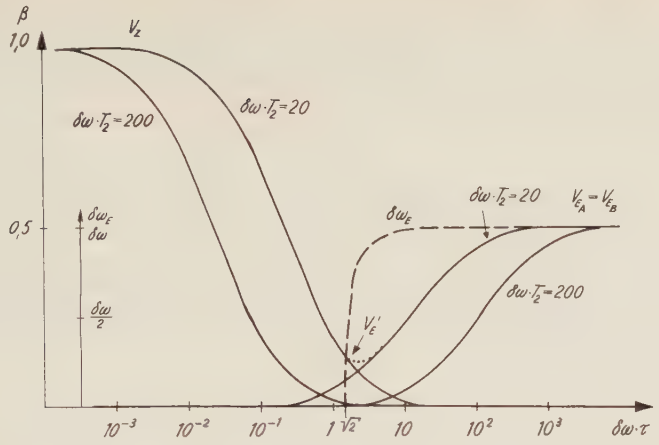


Fig. 10

—— Amplituden der Aussen- und der Zentrallinien als Funktion von $\delta\omega \cdot \tau$ mit den Werten des Parameters
$\delta\omega \cdot T_2 = 20,\ 200$ für $p_A = p_B$
– – Abstand $\delta\omega_E$ der Resonanzmaxima der Aussenlinien als Funktion von $\delta\omega \cdot \tau$
..... Amplitude der verschobenen Aussenlinie v'_E als Funktion von $\delta\omega \cdot \tau$

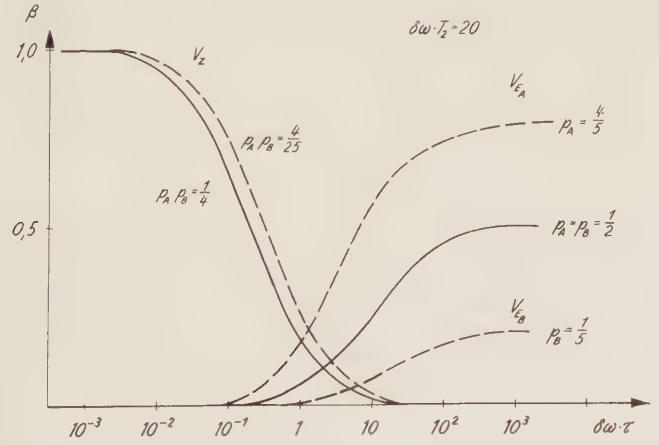


Fig. 11

Amplituden der Aussen- und der Zentrallinien V_E und V_Z als Funktion von $\delta\omega \cdot \tau$ ($\delta\omega \cdot T_2 = 20$; $p_A = 4/5$; $p_B = 1/5$)

3.22. Verschiebung der Resonanzmaxima der Aussenlinien

Die Berechnung der Lage der Resonanzmaxima von V, die sich durch Differenzieren von V (Gleichung (2)) nach $\Delta\omega$ gewinnen lässt, wurde

kürzlich von GUTOWSKY und HOLM[9]) durchgeführt. Sie finden einen sehr komplizierten Ausdruck. Dieser lässt sich aber, unter der Voraussetzung, dass die Aussenlinien nicht überlappen, stark vereinfachen. Wir finden, falls $p_A = p_B$ ist,

$$\delta\omega_E = \delta\omega \sqrt{1 - 2\left(\frac{\delta\omega \cdot T_2 + \delta\omega \cdot \tau}{\delta\omega \cdot T_2 \cdot (\delta\omega \cdot \tau)^2}\right)} \tag{4}$$

Näherungsbedingung: $[\delta\omega \cdot T_2 \gg 3]$

$\delta\omega_E$ ist reell, solange $\delta\omega \cdot \tau \geq \sqrt{2}$, d. h., sobald $\tau \cdot \delta\omega = \sqrt{2}$, verschwinden die Aussenlinien. Die Zentrallinie hat dann ihre grösste Breite (Fig. 10).

3.23. Die Amplitude der verschobenen Aussenlinie V_E'

Wie erwähnt, verschieben sich die Aussenlinien mit abnehmendem τ. Ihr Abstand $\delta\omega_E$ wird kleiner. Die Resonanzmaxima liegen also nicht mehr an den Stellen $\pm\, \delta\omega/2$. Das hat zur Folge, dass die in Abschnitt 3.31 berechneten Werte von V_E zu klein werden, sobald Linienverschiebung stattfindet.

Durch Einsetzen der Grösse $\Delta\omega = \pm\, \delta\omega_E/2$ in die Gleichung (2) lässt sich im Falle gleicher Konzentrationen p_A und p_B die Amplitude der verschobenen Aussenlinie berechnen.

$$V_E' = \beta \cdot \frac{1}{2 + \frac{\delta\omega \cdot T_2}{\delta\omega \cdot \tau} - \frac{\delta\omega \cdot T_2}{(\delta\omega \cdot \tau)^3}}\,; \quad [\delta\omega \cdot T_2 \gg \delta\omega \cdot \tau]\,; \tag{5}$$

V_E' ist in Fig. 10 dargestellt. Man sieht, dass bei abnehmendem $\delta\omega \cdot \tau$ V_E' erst mit dem Einsetzen der Linienverschiebung sich von V_E unterscheidet. Da das Resonanzmaximum der Aussenlinie nur existiert, solange $\tau \cdot \delta\omega \geqq \sqrt{2}$ (Abschnitt 3.22), verliert auch die Amplitude V_E' für $\tau \cdot \delta\omega < \sqrt{2}$ ihren Sinn.

3.24. Die Linienbreiten der Aussen- und der Zentrallinien Δ_E, Δ_Z

Die Linienbreite wird für die folgenden Beziehungen als Abstand der Frequenzen definiert, für welche die Amplitude der Resonanzlinie auf den halben Wert des Resonanzmaximums abgefallen ist.

Aus der Gleichung (2) findet man bei sehr langem und sehr kurzem τ ($\tau = 0\,;\, \infty$) die Werte der Aussenlinien- und der Zentrallinienbreiten $\Delta_E = \Delta_Z = 2/T_2$.

Unter den Voraussetzungen, dass die Aussenlinien nicht überlappen, dass ferner p_A und p_B nicht zu stark verschieden sind und dass $\delta\omega\cdot\tau \gg 1$ bzw. $\delta\omega\cdot\tau \ll 1$ folgt die angenäherte Linienbreite:

Näherungsbedingungen:

$$\left.\begin{aligned}
\Delta_{E_A} &= \frac{2}{T_2}\left(1+\frac{\delta\omega\cdot T_2}{\delta\omega\cdot\tau_A}\right) = \frac{2}{T_2}\left(1+p_B\frac{\delta\omega\cdot T_2}{\delta\omega\cdot\tau}\right); \\
\Delta_{E_B} &= \frac{2}{T_2}\left(1+\frac{\delta\omega\cdot T_2}{\delta\omega\cdot\tau_B}\right) = \frac{2}{T_2}\left(1+p_A\frac{\delta\omega\cdot T_2}{\delta\omega\cdot\tau}\right); \\
\Delta_Z &= \frac{2}{T_2}\left(1+\delta\omega\cdot\tau\cdot\delta\omega\cdot T_2\cdot\frac{\tau_A\cdot\tau_B}{\tau_A\cdot\tau_B}\right) = \frac{2}{T_2}(1+p_A p_B\,\delta\omega\cdot\tau\cdot\delta\omega\cdot T_2)
\end{aligned}\right\} \begin{aligned}&[\delta\omega\cdot\tau \gg 1] \\ &[\delta\omega\cdot\tau \ll 1]\end{aligned} \Bigg\} \left[\delta\omega\cdot T_2 \gg \frac{1}{p_A p_B}\right], \tag{6}$$

wobei nach 3.1

$$\tau_A = \frac{\tau}{p_B}; \qquad \tau_B = \frac{\tau}{p_A}.$$

Die Linienbreiten sind in Fig. 12 dargestellt. Die Zunahme der Breite der Aussenlinie geht proportional dem reziproken Wert der Lebenszeit des entsprechenden Zustandes. Bei abnehmendem τ wird also die Linie mit kleinerer Amplitude rascher verbreitert.

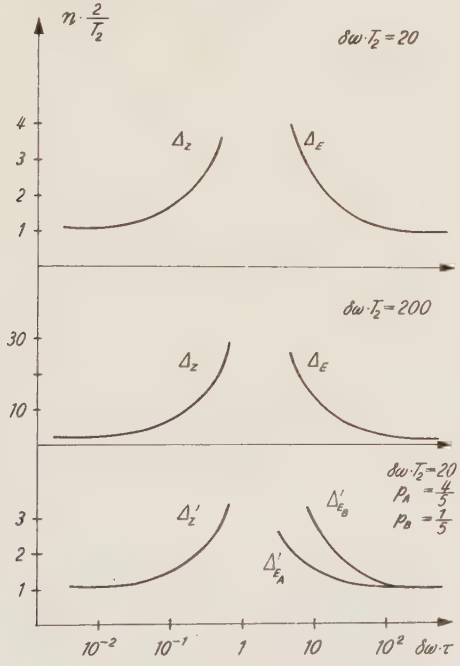


Fig. 12
Linienbreiten als Funktion von $\delta\omega\cdot\tau$ und $\delta\omega\cdot T_2$

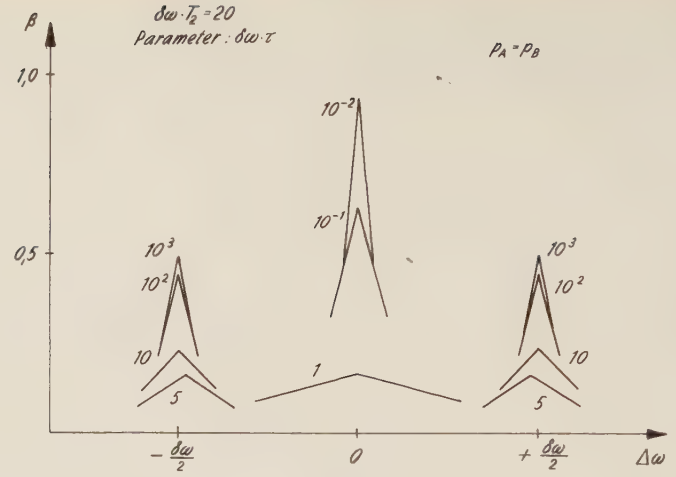


Fig. 13a

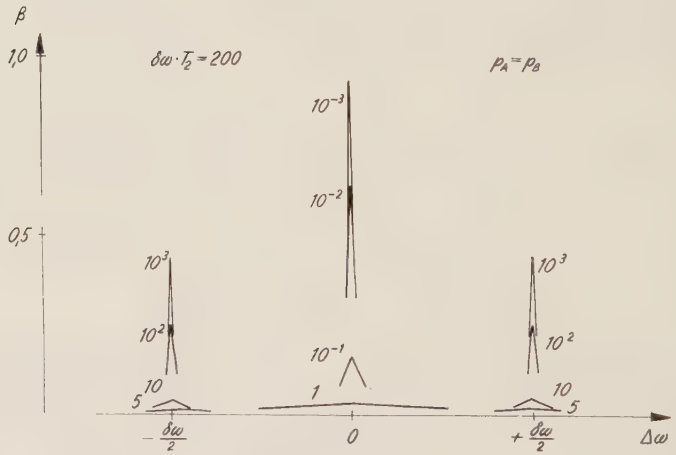


Fig. 13b

NMR-Spektren unter dem Einfluss eines chemischen Austausches zwischen den Komponenten A und B
(Auswirkung des Parameters $\delta\omega \cdot T_2$)
a) $p_A = p_B = 1/2$; $\delta\omega \cdot T_2 = 20$
b) $p_A = p_B = 1/2$; $\delta\omega \cdot T_2 = 200$

Es ist interessant festzustellen, dass die in den Abschnitten 3.22 und 3.24 angegebenen Gleichungen für Linienverschiebung und Linienbreite durch Einsetzen von $T_2 = \infty$ identisch werden mit entsprechenden, von P. W. ANDERSON[17]) aus rein statistischen Überlegungen ohne Berücksichtigung der BLOCH-Gleichungen abgeleiteten Beziehungen.

Aus den vorliegenden Formeln (3) bis (6) lassen sich nun Spektren mit verschiedenen Parametern $\delta\omega \cdot \tau$, $\delta\omega \cdot T_2$, p_A und p_B berechnen. Diese sind in Fig. 13a und 13b sowie Fig. 14 dargestellt.

In Fig. 13b ist der Parameter $\delta\omega \cdot T_2$ 10mal grösser als in Fig. 13a, d. h. in Fig. 13b ist entweder der Linienabstand $\delta\omega$ grösser oder T_2 länger. Die Auswirkung dieses Unterschieds im Spektrum besteht im extremen Fall, d. h. bei grossem $\delta\omega \cdot T_2$ darin, dass die Amplituden der Aussenlinien bei abnehmendem $\delta\omega \cdot \tau$ an den Stellen $\Delta\omega = \pm \delta\omega/2$ im Untergrund, der durch das Rauschen der Apparatur bedingt ist, verschwinden, bevor die Zentralamplitude wächst. Es ist dann durchaus möglich, dass bei $\delta\omega \cdot \tau = \sqrt{2}$ vom Spektrum überhaupt nichts zu sehen ist.

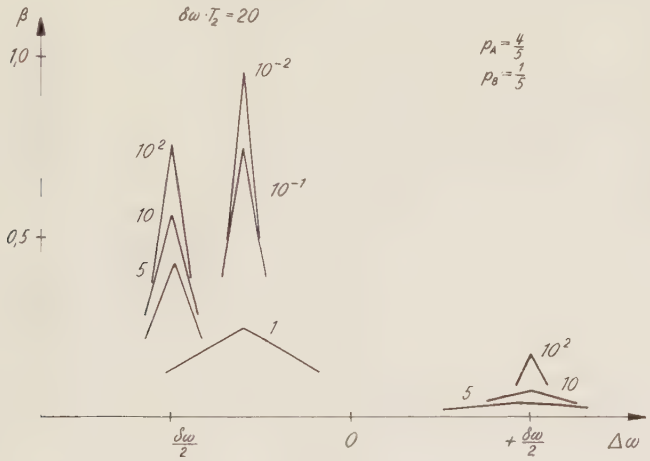


Fig. 14
NMR-Spektrum unter dem Einfluss eines chemischen Austausches zwischen Komponenten verschiedener Konzentration
$\delta\omega \cdot T_2 = 20$; $p_A = 4/5$; $p_B = 1/5$

Fig. 14 zeigt, dass, wie bereits erwähnt, die kleinere Linie bei abnehmendem $\delta\omega \cdot \tau$ rascher breit wird als die grössere. Diese Tatsache kann sich wieder im extremen Fall dadurch bemerkbar machen, dass in einem gewissen $\delta\omega \cdot \tau$-Bereich eine einzige Linie sichtbar ist, die sich beim Erwärmen der Probe verbreitert und damit ihren Aussenliniencharakter zeigt.

Das theoretisch hergeleitete Verhalten der Spektren soll in einer späteren Arbeit an praktischen Beispielen bestätigt werden.

Die vorliegende Arbeit wurde durch finanziellen Beitrag des Schweizerischen Nationalfonds ermöglicht. Ich danke Herrn Prof. Dr. H. Erlenmeyer, den Firmen E. I. Dupont de Nemours & Co., CIBA AG. und F. Hoffmann-La Roche & Co. AG. für zur Verfügung gestellte Sub-

stanzen sowie Herrn Prof. R. A. Ogg, jun. und Frl. I. Gränacher für die aktive Mitarbeit. Besonders aber möchte ich meinem Lehrer, Herrn Prof. Dr. P. Huber für unablässige Unterstützung und Beratung herzlich danken. Ebenso bin ich Herrn Prof. Dr. H. Labhart für viele wertvolle Diskussionen und Hinweise dankbar.

Literaturverzeichnis

*) Allgemeine Darstellungen:
Andrew, E. R., Nuclear Magnetic Resonance, Cambridge 1955.
Grivet, P., La résonance paramagnétique nucléaire, Paris 1955.
Kopfermann, H., Kernmomente, Frankfurt 1956.
Lösche, A., Kerninduktion, Berlin 1957.

[1]) Bloch, F., Hansen, W. W. und Packard, M., Phys. Rev. *69*, 680 (1946).
[2]) Purcell, E. M., Torrey, N. C. und Pound, R. V., Phys. Rev. *69*, 37 (1946).
[3]) Bloembergen, N., Phys. Rev. *73*, 679 (1948).
[4]) Pound, R. V., Phys. Rev. *72*, 1273 (1947).
[5]) Diehl, P., Helv. Phys. Acta *19*, 219 (1956).
[6]) McConnell, H. M. und Holm, C. H., J. Chem. Phys. *25*, 1289 (1956).
[7]) Bloch, F., Phys. Rev. *94*, 496 (1954).
[8]) Gutowsky, H. S. und Saika, H., J. Chem. Phys. *21*, 1688 (1953).
[9]) Gutowsky, H. S. und Holm, C. H., J. Chem. Phys. *25*, 1228 (1956).
[10]) Briegleb, G., Zwischenmolekulare Kräfte, Stuttgart 1937, S. 89ff.
[11]) Hein, F., Chemische Koordinationslehre, Zürich 1950, S. 310.
[12]) Greenwood, N. W. und Martin, R. L., J. of Chem. Soc. *75*, 1427 (1953).
[13]) Bloch, F., Arnold, J. T., Anderson, W. A., Phys. Rev. *102*, 104 (1956).
[14]) Wamser, C. A., J. of Am. Chem. Soc. *73*, 409 (1951).
[15]) Arnold, J. J., Phys. Rev. *102*, 136 (1956).
[16]) Anderson, W. A., Private Mitteilung (1957).
[17]) Anderson, P. W., J. Phys. Soc. Japan *9*, 316 (1954).
[18]) Bloch, F., Phys. Rev. *70*, 460 (1946).
[19]) McConnell, H. M., J. Chem. Phys. *28*, 430 (1958).

Magnetoresistance and Size Effects in Indium at Low Temperatures

by **J. L. Olsen**

Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik,
Eidgenössische Technische Hochschule, Zürich

(25. IX. 1958)

Zusammenfassung. Messungen des elektrischen Widerstandes von sehr reinen Indium-Drähten mit Durchmessern zwischen 0,06 und 2,5 mm wurden bei der Temperatur des flüssigen Heliums durchgeführt. Aus der Durchmesserabhängigkeit des Widerstandes ohne angelegtes Magnetfeld wurde der Wert $\varrho_b l = 1{,}8 \times 10^{-11}$ Ohm cm^2 berechnet (ϱ_b ist der Widerstand des Metalls bei grossen Proben, l die freie Weglänge der Elektronen). Eine durchmesserabhängige Abweichung von der Matthiessenschen Regel wurde auch beobachtet.

Die magnetische Widerstandsänderung bei dicken Proben stimmt mit den Messungen von Justi und Mitarbeitern bis zu den höchsten von ihnen gemessenen Werten von H/ϱ überein (H = Magnetfeld, ϱ = Widerstand im Feld Null). Bei weiteren Felderhöhungen wird zunehmende Sättigung der Widerstandsänderung beobachtet. Dünne Proben in Quer- und Längsfeld zeigen Durchmesserabhängigkeiten der magnetischen Widerstandsänderung, die den von MacDonald und von Chambers in Natrium beobachteten Effekten analog sind. Aus diesen Effekten lässt sich abschätzen, dass in Indium $m\bar{v}$ ungefähr den dreifachen Wert freier Elektronen besitzt. (m = effective mass, $\bar{v}$ = mittlere Geschwindigkeit der Elektronen an der Fermi-Oberfläche.)

1. Introduction

There is an apparent disagreement between theoretical predictions and experimental results on the magnetoresistance of pure metals at low temperatures in high magnetic fields. Recent theoretical studies[1)2)] agree with older work[3)4)] in suggesting that only two types of behaviour should be found in high fields. For one group of metals the increase in resistance should approach a saturation value while for the other the resistance change should continue to increase quadratically with field far beyond any magnetic field values at present accessible experimentally. There is, however, an increasing body of experimental data on metals where the high field resistance change is neither quadratic in the field nor constant, but appears to vary linearly with field.

A change from quadratic to linear behaviour in high fields has recently been observed in sodium[5]), copper[6])[7]), silver[8]), and tin[9]). It has, however, been suggested by BOROVIK[10]) that this observed linear dependence only occurs in a limited field region and that it merely represents a transition between two quadratic regions. His extension of KAPITZA's[11]) data on cadmium appears to support this view. On the other hand the work of CHAMBERS[6]) and COTTI[7]) on copper, and work by LÜTHI[8]) on silver shows the linear region to be far wider than would be consistent with BOROVIK's argument.

The situation is thus unclear as far as metals which do not tend towards saturation is concerned. It seemed interesting also to investigate those few metals where saturation has hitherto been believed to occur. Recent indications[12]) from measurements in pulsed field up to 150000 Oersted that the resistance of aluminium after appearing to reach saturation may again increase linearly are being investigated in more detail*), and we have also thought it useful to examine the saturation region in indium. The easy availability of indium of remarkably high purity makes it possible to extend JUSTI's[13]) magnetoresistance data considerably without going to very high magnetic fields.

In the present paper we report on a series of such measurements in longitudinal and in transverse fields up to 10000 Oersted. The size dependence of the zero field resistivity allowed a determination of the electronic mean free paths. In the course of our investigation of this size effect, we found a deviation from Matthiessen's rule similar to that noted previously by ANDREW[14]) for tin. The effect in indium is, however, several times greater than that in tin. Size effects in the magnetoresistance corresponding to those reported by MACDONALD[15]) and by CHAMBERS[16]) for sodium were also observed.

2. Experimental

The specimens were extruded from indium obtained from Johnson Matthey & Co. and from Consolidated Mining and Smelting Co. of Canada (Tadanac brand)**). A list of the specimens investigated is shown in Table I.

Potential leads to the specimens were made by coldwelding of pieces of pure indium wire. The resistance measurements were made by simultaneous current and potential measurements. The potential was measured with a galvanometer amplifier of a type described by MACDONALD[17]) and having a sensitivity of ca. 600 mm/μV. The customary field and current

*) We are grateful to Dr. D. SHOENBERG for telling us of measurements which cast doubt on these results.

**) We are grateful to Dr. G. K. WHITE of the National Research Council Ottawa for presenting us with one of his specimens – our In I.

reversal procedures were carried out to eliminate the Hall voltage. For the thickest specimens this could be equivalent to about 20% of the apparent resistance drop in the specimens.

Table I
The Specimens

Specimen	Source	Diam. mm	$\varrho_{4.2}/\varrho_{293} \times 10^4$	$\varrho_0/\varrho_{293} \times 10^4$	$\varrho_0 \times 10^9$ (ohm cm)
In 1	GKW	0·4	2·00	1·54	1·36
In 2	JM	2·0	0·705	0·307	0·27
In 3	T	0·311	1·945	1·403	1·24
In 4	T	0·0855	3·66	2·99	2·63
In 5	T	0·57	1·29	0·82	0·72
In 6	T	2·54	0·92	0·52	0·46
In 7	JM	0·0604	4·38	3·59	3·16
In 8	JM	0·2	1·75	1·22	1·07
In 9	T	0·3	1·82	1·34	1·18
In 10	T	2·54	0·94	0·57	0·50

GKW: G. K. White; JM: Johnson, Matthey; T: "Tadanac" brand.

The stability and linearity of such amplifiers can be improved by further amplification of the photocell current before using it in the feed back circuit. We have found the photocell and transistor amplifier circuit shown in Figure 1 very simple and convenient.

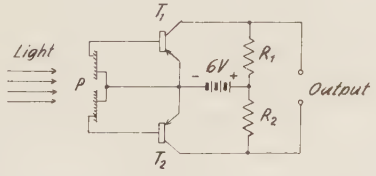


Fig. 1
Photocurrent amplifier circuit for galvanometer amplifier.
P: split photocell, T_1, T_2: Transistors (e.g. RCA type N 175)
R_1, R_2: 10 k Ohm.

An iron core electromagnet capable of producing 8000 Oersted was used for the transverse magnetic fields, and a liquid air cooled solenoid provided longitudinal magnetic fields up to 12000 Oersted.

3. Zero field resistance

The resistance in zero magnetic field was investigated over a range of temperatures. Below 3·37° K where indium becomes superconducting the zero field resistance had to be obtained by extrapolation from measure-

ments in fields greater than the critical. Near the superconducting transition temperature this can be done easily and reliably assuming a quadratic field dependance of the magnetoresistance. For the lower temperatures magnetoresistive saturation becomes important and some care is required in extrapolating.

The values of $\varrho_{4\cdot2}/\varrho_{293}$ and ϱ_0/ϱ_{293} where ϱ_T is the resistivity at temperature T °K are shown in Table I. It will be seen that there is a general tendency for the thinnest specimens to show the highest resistivity. In Figure 2 we show the temperature dependence of the resistivity below 4·2° K. To make identification of the curves easier we have plotted $(\varrho_T - \varrho_{4\cdot2})/\varrho_{293}$. We note that there is a very considerable deviation from Matthiessen's rule, and that the thinnest specimens show almost twice as great a resistivity change between 0° K and 4·2° K as do the thick specimens.

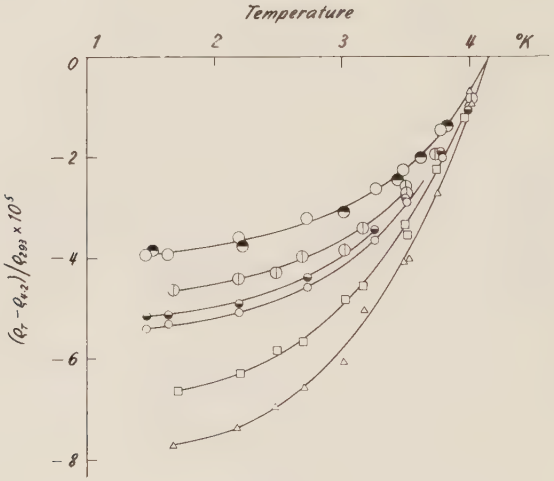


Fig. 2
Resistivity change in Indium below 4° K.

○ In 2	2·0 mm ⌀	◓ In 6	2·5 mm ⌀
ⓘ In 5	0·6 mm ⌀	◒ In 8	0·2 mm ⌀
○ In 3	0·3 mm ⌀	□ In 4	0·1 mm ⌀
△ In 7	0·06 mm ⌀		

A detailed analysis of the conductivity of thin cylindrical wires has been given by DINGLE[18]) who gives tables ϱ/ϱ_b where ϱ is the observed resistivity and ϱ_b the bulk resistivity of the material. ϱ/ϱ_b depends on a/l where a is the diameter of the specimen and l is the bulk mean free path of the electrons. A further parameter p; the ratio of specular to diffuse scattering of the electrons at the specimen surface, also occurs. Work by ANDREW on mercury[14]) is consistent with $p = 0$ while MAC-

DONALD and SARGINSON[19]) find that in sodium this may not be the case. Our present measurements are most easily fitted to $p = 0$, and we shall assume $p = 0$ throughout this paper. It is worth noting that DINGLE's calculation with $p = 0$ differs by less than 5% from NORDHEIM's[20]) approximate formula

$$\varrho/\varrho_b = 1 + l/a\,. \tag{1}$$

Our problem is now to fit our measured data for ϱ and a to either DINGLE's table or to equation (1) using l and ϱ_b as variable parameters. In view of the observed deviation from Matthiessen's rule we must limit ourselves to making use of the data for 0° K. Since indium appears to self-anneal rapidly at room temperature it is quite reasonable to assume that ϱ_b is the same for all specimens pressed from a given batch of indium. This appears to be borne out by the results.

l is inversely proportional to ϱ_b so that according to (1) a plot of ϱ against l/a should yield a series of parallel straight lines each intersecting $l/a = 0$ at ϱ_b. Such a plot is shown in Figure 3. From this we find $\varrho_b = 4{\cdot}0 \times 10^{-10}$ ohm cm[1] and $l = 0{\cdot}045$ cm for the Tadanac material and

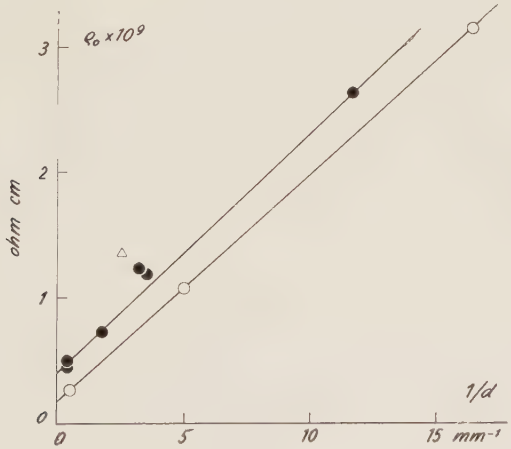


Fig. 3
Size effect in zero field resistivity at 0° K.
○ JOHNSON MATTHEY, ● TADANAC, △ In 1.

$\varrho_b = 1{\cdot}7 \times 10^{-10}$ ohm cm[1] and $l = 0{\cdot}105$ cm for the Johnson Matthey material. We thus obtain a value for the constant $\varrho_b l$ of $\varrho_b l = 1{\cdot}8 \times 10^{-11}$ ohm cm[2]. This is twice that reported recently by MEISSNER and ZDANIS[21]) but a careful examination of their results would appear to allow an interpretation of their results in terms of somewhat higher value for l than suggested in their publication. A somewhat similar discrepancy is seen when work of ANDREW[14]) and of MEISSNER[22]) on tin is compared.

We may note that according to the Sommerfeld theory of conduction $\varrho_b l$ for n free electrons per unit volume is given by

$$\varrho_b l = \left(\frac{3}{8\pi}\right)^{1/3} \frac{h}{\varepsilon^2 n^{2/3}} . \tag{2}$$

Here ε is the electronic charge and h is Planck's constant. Using this relation our measurements suggest

$$n/n_a = 0{\cdot}49 ,$$

where n_a is the number of atoms per unit volume.

The deviation from Matthiessen's rule shown in Figure 2 requires some comment. Equation (1) may be rewritten

$$\varrho = \varrho_b + \varrho_b l/a .$$

Since $\varrho_b l$ is a constant of the metal the second term on the right is independent of ϱ_b, and therefore a given change in bulk resistivity should be reflected in an equal change in the resistivity of a thin specimen. This suggests that at any rate to the degree of approximation provided by (1) Matthiessen's rule should hold. DINGLE's more accurate calculation would give rise to a slight deviation, but by no means large enough to explain the experimental results. A possible explanation appears to us to lie in the different character of the impurity scattering which causes the residual resistance, and of the phonon scattering which provides the temperature dependent part of the resistance. The impurity scattering is a large angle scattering and thus a single event suffices to remove the momentum given to an electron by the field. For phonon scattering, however, this is not the case and many collisions are needed to achieve this in the bulk metal. In thin specimens, on the other hand, a few electron phonon collisions leading to quite a small curvature of the electronic path may be sufficient to force an electron originally moving along the specimen axis into collision with the surface where diffuse scattering may take place. The phonons will thus be particularly effective in shortening the free path of those electrons which should be contributing significantly to the conductivity.

In this way the phonons will create more temperature dependent resistivity in thin specimens than they normally do in thick specimens.

4. Bulk Magnetoresistance

In Figure 4 we show measurements of the magnetoresistance in In 2 at 4·2° K where $a/l > 5$. The results are plotted in a reduced Kohler diagram against $H/\mathfrak{r}$ where $\mathfrak{r} = \varrho_T/\varrho_\theta$ and θ is the Debye temperature. We have taken $\theta = 100°$ K for Indium. Our results in a transverse mag-

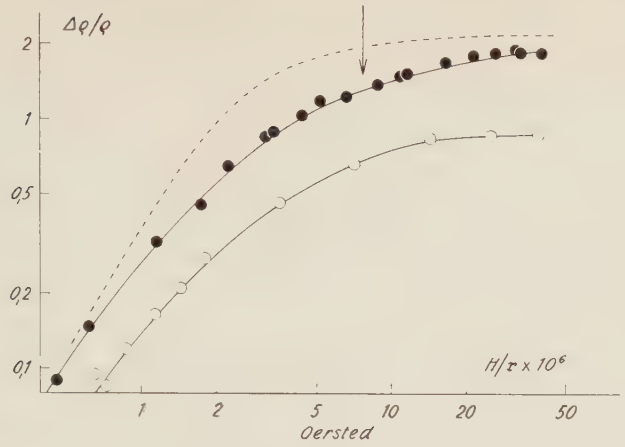


Fig. 4
Bulk Magnetoresistance In 2 at 4° K.
○ longitudinal, ● transverse, – – – equation (3), $\tau = \varrho_T/\varrho_{100}$.

netic field are in good agreement with JUSTI's[13]) curve as far as this goes (indicated by arrow). Beyond this point the approach to saturation continues and there is no indication of a tendency to increase above the saturation level. It is perhaps interesting to compare the shape of the experimental curve with that obtained from simple theoretical treatments such as that of SONDHEIMER and WILSON[3]) which assumes two overlapping energy bands of spherical symmetry. Such a treatment yields

$$\frac{\Delta\varrho}{\varrho} = \frac{A H^2}{1 + B H^2} \tag{3}$$

where $\Delta\varrho$ is the resistivity change on applying a magnetic field H, and ϱ is the resistivity in zero field. A and B are constants depending on the relative numbers of electrons in the two bands and upon the relaxation times and effective masses. It will be seen that the transition from the quadratic to the constant region is much wider experimentally than suggested by this simple theory. Such a difference is not at all surprising and can be explained by the existence of a smeared out range of effective masses and relaxation times rather than just two well defined values of each as assumed in the simple theory.

No longitudinal measurements have been published so far by other workers. Our results are in keeping with the general trend of longitudinal results in many other metals in that $\Delta\varrho/\varrho$ for the longitudinal case is about half that for the transverse case.

Simple free electron theory provides an estimate of the ratio of electron mean free path l to orbital radius r in a magnetic field H.

$$\frac{l}{r} = \frac{H}{n\varepsilon c} \cdot \frac{1}{\varrho} \tag{4}$$

where c is the velocity of light, n the number of free electrons per unit volume, and ϱ is the resistivity. A numerical evaluation of (4) for 10000 Oersted gives $l/r = 40$ for the Tadanac specimens and $l/r = 95$ for the Johnson, Matthey specimens at 0° K.

5. Magnetoresistive size effects

Figures 5 and 6 show $\Delta\varrho/\varrho$ in transverse and longitudinal magnetic fields for a range of specimens of smaller diameters. There are obvious deviations from KOHLER's rule according to which

$$\Delta\varrho/\varrho = f(H/\varrho) \tag{5}$$

where ϱ is the resistivity in zero field and the function f is characteristic of a given metal. These deviations are small in low fields but become important in higher fields. It will be seen that the thinner the specimen the smaller the resistivity change, and in longitudinal fields $\Delta\varrho/\varrho$ even starts decreasing in the highest fields.

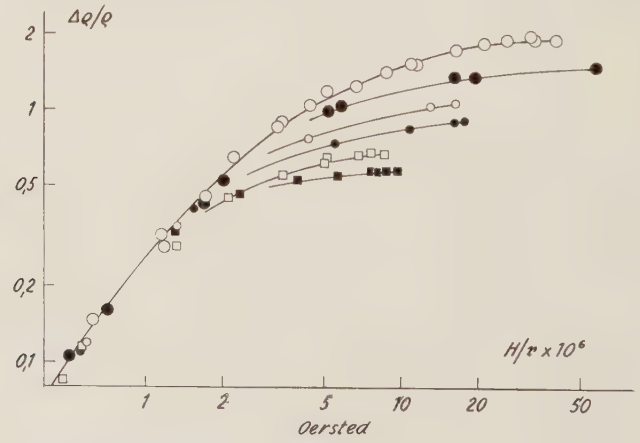


Fig. 5
Magnetoresistive size effect in transverse field.
○ ● In 2 2 mm ∅; ○ ● In 3 0·3 mm ∅; □ ■ In 4 0·1 mm ∅
○ ○ □ 4·2° K; ● ● ■ 2° K

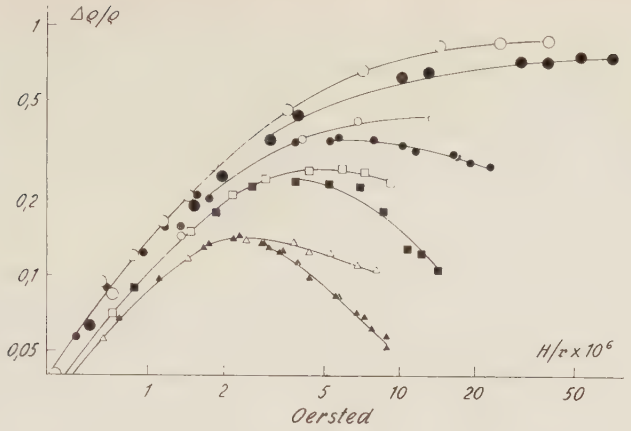


Fig. 6

Magnetoresistive size effect in longitudinal field.
○● In 2 2 mm ⌀; ○● In 3 0·3 mm ⌀;
□■ In 4 0·1 mm ⌀; △▲ In 7 0·06 mm ⌀;
○○□△ 4·2° K; ●●■▲ 2° K.

A magnetoresistive size effect leading to a size dependent reduction of resistivity in a magnetic field was first observed in sodium by MacDonald[15]) in a transverse field and by Chambers[16]) in a longitudinal field. Calculations of this effect for a metal showing no bulk magnetoresistance have been carried out by MacDonald and Sarginson[19]) and by Chambers[16]) for the transverse and longitudinal cases respectively. It is reasonable to suppose that the effects observed by us have a similar origin.

The resistance decrease calculated by MacDonald and by Chambers arises because the mean time between collisions in a specimen where boundary scattering predominates can be increased by applying a magnetic field. This is because a sufficiently large field will make the electrons move in helical orbits which are smaller than the diameter of the wire. A portion of the electrons will therefore collide less often with the surface of the wire, and for them the mean time between collisions will be increased. The overall resistivity therefore decreases and in the limit it will reach the bulk resistivity. For real metals this bulk value will be subject to the normal bulk magnetoresistive resistance increase, and it becomes very difficult to distinguish between the various effects. In sodium, however, where the magnetoresistive size effect was first found the bulk magnetoresistance is very small, and the low field region can easily be analysed. The observation of similar effects in indium is possible because of the saturation of the bulk magnetoresistance in high fields.

*

An estimate of the combined effects of bulk magnetoresistance and of magnetoresistive size effect may be carried out as follows: We assume that Kohler's rule is obeyed for the bulk matèrial, so that $\Delta\varrho/\varrho = f(H/\varrho)$ where the function $f(H/\varrho)$ is known. We also assume that the magnetoresistive size effect is known in the absence of bulk magnetoresistance. As remarked earlier theoretical treatments are available, and for the longitudinal effect CHAMBERS[16]) has given tables. We may write for this size and field dependent resistivity ϱ_s:

$$\varrho_s = \varrho_b\, C(l/r, a/l) \tag{5}$$

where ϱ_b is the bulk resistivity in the absence of a magnetic field and C is a calculated function of l/r and a/l (a = wire diameter, r = orbital radius, and l = mean free path).

In considering a suitable modification of Kohler's rule we may remember that H/ϱ occurs as a variable because it is a measure of the ratio of the mean free path and the radius of curvature of the electron orbit. In other words it is proportional to the ratio of the cyclotron frequency and the electronic relaxation time. Now simple treatments of the bulk magnetoresistance generally assume an unchanged relaxation time in the magnetic field. On the other hand it is clear that the relaxation time in thin specimens is reduced below that corresponding to the bulk resistivity by the size effect, and one must therefore use ϱ_s rather than ϱ_b for providing the correct relaxation time in Kohler's rule. It thus seems reasonable to change Kohler's rule from its usual form in the absence of size effect:

$$\frac{\varrho_H - \varrho_b}{\varrho_b} = f\left(\frac{H}{\varrho_b}\right) \tag{6}$$

where ϱ_H is the observed resistivity in a field H, to the following form:

$$\frac{\varrho_H - \varrho_s}{\varrho_s} = f\left(\frac{H}{\varrho_s}\right) \tag{7}$$

in the presence of size effect.

In low fields when ϱ_s has its zero field value this formula leads to the observed approximate applicability of Kohler's rule with the actual zero field resistance used as ϱ_s. In higher fields the agreement breaks down, and in the limit of very high fields when ϱ_s tends to ϱ_b we have

$$\varrho_H = \varrho_b\left\{1 + f(H/\varrho_b)\right\}. \tag{8}$$

For thin indium specimens one would thus expect the resistance initially to increase to a maximum value and then to decrease to the saturation value of the bulk resistivity. In sufficiently thin wires the resistance in very high fields might even be lower than that in zero field.

To compare equation (7) with experiment in somewhat more detail we need values of ϱ_s. Unfortunately these are difficult to evaluate for the transverse case, but for the longitudinal case we may use CHAMBERS[16]) tables. Once the bulk resistivity of the sample and the bulk magnetoresistance function f are known only the parameters l/a and l/r are required. l is related to the value of ϱ_b l obtained from the measurements of § 3 while on Sommerfeld's theory

$$r = \frac{m v c}{\varepsilon H} \tag{9}$$

where m is the mass of an electron and v is the mean velocity of electrons at the top of the Fermi distribution. It is obvious to choose for l/a a value fitting the zero field resistivity of the specimen and only mv has to be decided upon. This is a property of the metal and must be the same for all specimens.

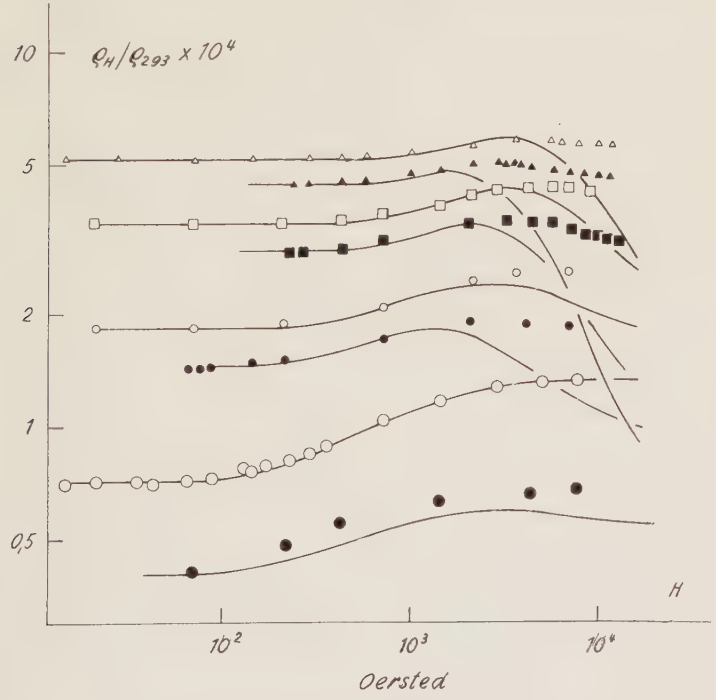


Fig. 7

Test of equation (7) for longitudinal case using $m\bar{v} = 2{\cdot}7 \times$ free electron value.

Experimental points: ○ ● In 2 2 mm ∅; ○ ● In 3 0·3 mm ∅; □ ■ In 4 0·1 mm ∅; △ ▲ In 7 0·06 mm ∅; ○ ○ □ △ 4·2° K; ● ● ■ ▲ 2° K.

— calculated curves.

We find that no single value of mv fits all observations really well. Figures 7 and 8 therefore show the longitudinal case experimental results for a range of specimens compared with theoretical curves calculated using two different values of mv. For ease in distinguishing between different specimens ϱ is plotted against H. Then (7) becomes

$$\varrho_H = \varrho_s \{1 + f(H/\varrho_s)\}. \tag{10}$$

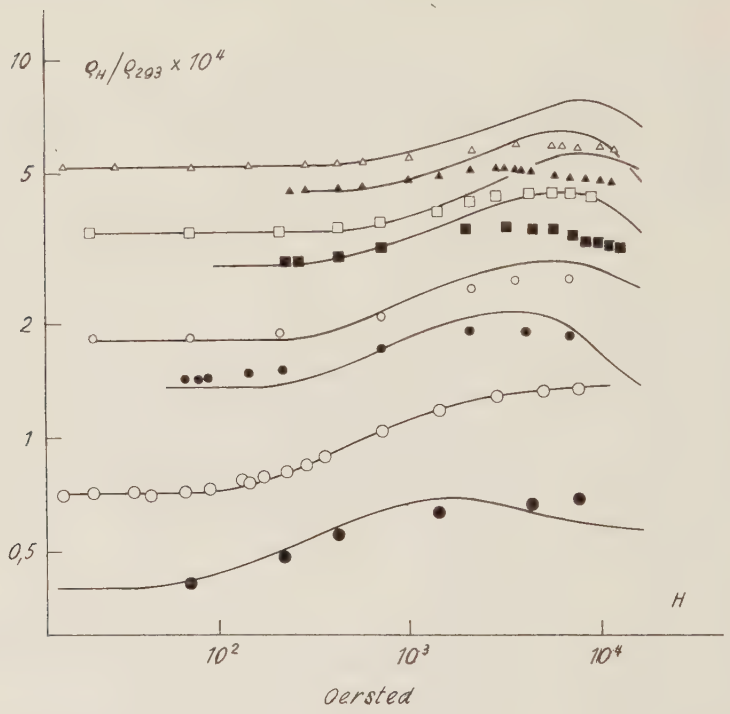


Fig. 8

Test of equation (7) for longitudinal case using $mv = 11 \times$ free electron value. Experimental points:

○ ● In 2 2 mm ∅; ○ ● In 3 0·3 mm ∅;
□ ■ In 4 0·1 mm ∅; △ ▲ In 7 0·06 mm ∅;
○ ○ □ △ 4·2° K; ● ● ■ ▲ 2° K.
— calculated curves.

It will be seen that the agreement between theory and experiment remains highly unsatisfactory in detail. While it appears that a reasonable fit may be obtained in low fields by choosing mv to be approximately 3 times the free electron value no single choice of mv will make the curves coincide in high fields. At 10000 Oersted an increase of mv to 11 times

the free electron value will make the theoretical resistance roughly equal the experimentally observed one, but even so the two sets of curves will intersect at a large angle.

6. Discussion

It is of some interest to compare the results found in these experiments on indium with similar data for other metals. Data on $\varrho_b\, l$ exists for a number of substances both from size effect measurements such as ours and from anomalous skin effect measurements. Data on $m\bar{v}$ for sodium has been obtained by CHAMBERS from magnetoresistive size effect work. Table II contains a collection of such information taken from work by ANDREW[14]) and CHAMBERS[16])[24]). The theoretical values in the table are based on the assumption of one free electron per atom.

Table II

	$\varrho_b l \times 10^{11}$ (ohm cm^2)			$m\bar{v} \times 10^{20}$	
	size eff.	anomalous skin effect	theor.	exp.	theor.
In	1·8		1·21	30	11
Na	1·11		1·46	9·1	9·7
Cu		0·65	0·66		
Ag		1·08	0·84		
An		1·18	0·83		
Sn	2·0	1·05	1·14		
Hg	3·6	2·7	1·10		
Al		1·6	0·82		

It will be seen that the differences between observed and theoretical values of $\varrho_b\, l$ are moderate for all the substances investigated but that anomalous skin effect and size effect measurements give different results. The discrepancies are probably no greater than might be expected in view of the wellknown deviations from spherical Fermi-surfaces.

Magnetoresistive size effect data on sodium yield a value for mv in low fields which is remarkably close to the free electron value, and even the value in indium seems quite reasonable. In indium, however, the theoretical curves cannot be made to fit the experimental data in higher fields. It is tempting to try to explain away this poor fit of the theoretical curves in high fields by postulating a wide range of values of effective momentum mv for different groups of electrons. On the other hand preliminary measurements here by P. COTTI on thin indium wires in pulsed magnetic fields up to 70000 Oersted indicate that a further rise in re-

sistivity may take place. This would mean a complete break-down of the theory sketched in § 4, and perhaps all that should be said now is that the present theory of galvanomagnetic phenomena has once more shown itself useful for low fields but less reliable in high fields.

Acknowledgements

I am very grateful to Professor Dr. P. GRASSMANN, the Director of this Institute, for his constant interest and encouragement in this research.

Part of this work was supported financially by a credit from the "Arbeitsbeschaffungsfonds des Bundes".

References

[1]) I. M. LIFSCHITZ, M. Y. AZBEL, and M. I. KAGANOV, J. Exp. Theor. Phys. USSR *30*, 220 (1956).
[2]) I. M. LIFSCHITZ, M. Y. AZBEL, and M. I. KAGANOV, J. Exp. Theor. Phys. USSR *31*, 63 (1956).
[3]) E. H. SONDHEIMER and A. H. WILSON, Proc. Roy. Soc. [A] *190*, 435 (1947).
[4]) M. KOHLER, Ann. Phys. Lpz. *5*, 99 (1949).
[5]) D. K. C. MACDONALD and W. B. PEARSON, Proc. Roy. Soc. [A] *241*, 257 (1957).
[6]) R. G. CHAMBERS, Proc. Roy. Soc. [A] *238*, 344 (1956).
[7]) P. COTTI, Diplomarbeit, Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH, 1958.
[8]) B. LÜTHI, Kammerlingh Onnes Conference, Paper 122 (1958).
[9]) B. LÜTHI, Helv. Phys. Acta *29*, 217 (1956).
[10]) E. S. BOROVIK, J. Exp. Theor. Phys. USSR *27*, 355 (1954).
[11]) P. L. KAPITZA, Proc. Roy. Soc. [A] *127*, 292 (1929).
[12]) B. LÜTHI and J. L. OLSEN, Nuovo Cimento *3*, 840 (1956).
[13]) A. FOROUD, E. JUSTI, and J. KRAMER, Phys. Z. *41*, 113 (1940).
[14]) E. R. ANDREW, Proc. Phys. Soc. [A] *62*, 77 (1949).
[15]) D. K. C. MACDONALD, Nature *163*, 637 (1949).
[16]) R. G. CHAMBERS, Proc. Roy. Soc. [A] *202*, 378 (1950).
[17]) D. K. C. MACDONALD, J. Sci. Inst. *24*, 232 (1947).
[18]) R. B. DINGLE, Proc. Roy. Soc. [A] *201*, 545 (1950).
[19]) D. K. C. MACDONALD and K. SARGINSON, Proc. Roy. Soc. [A] *203*, 223 (1950).
[20]) L. NORDHEIM, Act. Sci. et Ind. No. 131, Paris 1934.
[21]) H. MEISSNER and R. ZDANIS, Phys. Rev. *109*, 681 (1958).
[22]) H. MEISSNER, Phys. Rev. *109*, 668 (1958).
[23]) E. H. SONDHEIMER, Phil. Mag. Suppt. *1*, 1 (1952).
[24]) R. G. CHAMBERS, Proc. Roy. Soc. [A] *215*, 481 (1952).

Sur la réaction $K^{40}(n_{th}, p)A^{40}$

par **J. Rossel** et **J. Weber**
(Institut de Physique, Université de Neuchâtel)

(25 XI 1958)

Summary. The protons emitted by a thin layer of enriched KCl under irradiation with monoenergetic neutrons of 0,054 eV have been recorded in Ilford C_2 nuclear emulsion. The total neutron flux has been monitored by the $N^{14}(n, p)C^{14}$ reaction observed in the same emulsion. The cross-section for K^{40} has been found to be

$$\sigma(n, p) = (3{,}8 \pm 0{,}7) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

and the energy of the proton $E_p = (2{,}23 \pm 0{,}10)$ MeV in good agreement with the value deduced from the masses.

Using the experimental value of $\sigma(n, p)/\sigma(n, \gamma)$, a reasonable guess for Γ_γ and the theoretical estimate of Γ_p, it appears probable that the involved level of the compound nucleus K^{41} has spin $J = 9/2$ and odd parity.

Introduction

Parmi les éléments de masse $30 < A < 60$ plusieurs noyaux possèdent des énergies de réaction Q positives pour les processus (n, p) ou (n, α). La mesure de la section efficace $\sigma(n, p)$ ou $\sigma(n, \alpha)$ pour les neutrons thermiques et sa comparaison avec la section efficace de capture radiative $\sigma(n, \gamma)$ permet d'obtenir des renseignements sur les caractéristiques du noyau compound et éventuellement sur le rayon du noyau final.

Dans le cadre de notre programme d'étude de ces réactions au moyen des émulsions nucléaires, nous avons abordé le nuclide K^{40} pour lequel les réactions (n_{th}, p) et (n_{th}, α) sont toutes deux possibles d'après les tables récentes des valeurs de masses[1]):

$K^{40}(n_{th}, p)A^{40}: Q = (2{,}27 \pm 0{,}21)$ MeV; $E_p = 2{,}22$ MeV; $R_p = 47\mu$ | Emulsions
$K^{40}(n_{th}, \alpha)Cl^{37}: Q = (3{,}73 \pm 0{,}13)$ MeV; $E_\alpha = 3{,}37$ MeV; $R_\alpha = 12\mu$ | Ilford C_2

Le processus de capture électronique $K^{40} + \beta^- \rightarrow A^{40} + \gamma$ avec $E_\gamma = (1{,}46 \pm 0{,}01)$ MeV[2]) fournit les valeurs $Q = (2{,}24 \pm 0{,}02)$ MeV resp. $E_p = (2{,}18 \pm 0{,}02)$ MeV pour la première réaction ci-dessus, ce qui confirme en les précisant les données déduites des masses.

Méthode de mesure

La cible est constituée par une couche polycristalline de KCl d'une épaisseur moyenne de 15 μ protégée de part et d'autre par des feuilles de collodion de 3 μ d'épaisseur. Cet ensemble est placé en sandwich entre deux émulsions Ilford C_2 de 50 μ.

Le KCl, fourni par OAK-RIDGE, a été enrichi de 0,0118% à (3,64 $\pm$0,03)% d'abondance isotopique et ne contient aucun autre élément d'impureté pouvant réagir aux neutrons lents. (K^{39} est susceptible d'une réaction (n_{th}, α), mais les particules α produites ont un parcours $R_\alpha < 3\,\mu$ dans l'émulsion et sont totalement inobservables dans notre cas). Quant au chlore, la réaction $Cl^{35}(n_{th}, p)S^{35}$ produit, avec une section efficace de 0,30 b, des protons de 0,59 MeV dont la pénétration dans l'émulsion reste inférieure à 6,5 μ[3]). Ils se laissent donc facilement discriminer.

Le dosage du K^{40} par cm^2 a été fait par des pesées différentielles soigneuses dans des conditions hygroscopiques contrôlées et par la détermination au planimètre de la surface de la cible sur des agrandissements photographiques.

L'irradiation a été effectuée à la pile EL_2 de SACLAY dans le faisceau de neutrons monocinétiques de $\lambda = 1{,}23$ Å ($E = 0{,}054$ eV) du monochromateur à cristal (Pb, plan (111))*). Les neutrons traversaient la cible perpendiculairement.

Nous avons déterminé le flux total en mesurant le nombre des traces de protons de 6,6 μ de la réaction $N^{14}(n, p)C^{14}$ contenues dans une épaisseur donnée (10 μ) de l'émulsion du sandwich. Utilisant $\sigma(n, p) = \sigma_0(E_0/E)^{1/2} = (1{,}19 \pm 0{,}03)$b ($\sigma_0 = (1{,}75 \pm 0{,}05)$b[4]) pour $E_0 = 0{,}025$ eV et $E = 0{,}054$ eV), nous avons déterminé pour le flux moyen ayant traversé la cible, sur la base de 10^4 traces p dénombrées, la valeur: $(2{,}7 \pm 0{,}4) \cdot 10^{10}$ neutrons/cm^2.

Le dénombrement des traces de protons provenant du K^{40}, c'est-à-dire qui pénètrent dans l'émulsion, a été fait en tenant compte, par intégration graphique, de la correction géométrique due à la limite circulaire du champ de vue ainsi que de l'effet de self-absorption des protons dans la couche de KCl et la feuille de collodion protectrice. La mesure a porté sur un total de 1108 traces dont les longueurs ont également été déterminées. Les pouvoirs de freinage dE/dX de KCl et du collodion, nécessaires pour effectuer les corrections de longueur et de self-absorption, ont été obtenus par une interpolations soigneuse des valeurs connues pour les éléments métalliques.

Pour éviter des erreurs et éliminer les réactions parasites, seules les traces pénétrant de plus de 10 μ dans l'émulsion et faisant avec la normale

*) Nous tenons à remercier vivement madame H. FARAGGI ainsi que le groupe de spectroscopie neutronique de SACLAY de leur précieuse collaboration.

un angle supérieur à 20° ont été retenues. Les pertes correspondantes ont été corrigées sur la base d'une distribution angulaire isotrope.

La valeur du facteur de contraction de l'émulsion, utilisé pour les différentes corrections, a été déterminée par des mesures répétées au micromètre de l'épaisseur moyenne, avant et après le développement.

Résultats expérimentaux

Les conditions de notre mesure excluent l'observation éventuelle de la réaction $K^{40}(n_{th}, \alpha)Cl^{37}$. Sa probabilité est d'ailleurs environ 10^3 fois plus faible que celle de la réaction (n, p) par suite de l'effet de barrière de potentiel. Compte tenu des différentes erreurs de mesure et de l'imprécision statistique, la section efficace de la réaction (n, p) a été trouvée égale à:

$$\sigma(n, p) = (3{,}8 \pm 0{,}7) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

Le spectre des protons est donné par les histogrammes fig. 1 et fig. 2. Dans le premier, on s'est borné à construire la distribution des longueurs de traces observées dans l'émulsion; la limite supérieure doit donc correspondre à l'énergie des protons émis, après une faible correction due à

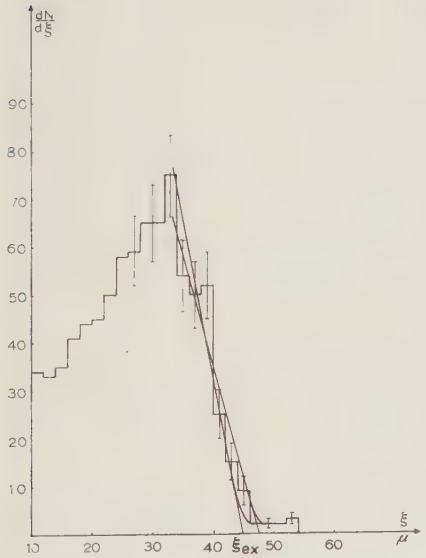


Fig. 1

Distributions des parcours de protons de la réaction $K^{40}(n_{th}, p)A^{40}$ pénétrant dans l'émulsion (Ilford C_2).
$N_t = 818$ traces ($\vartheta \geqslant 20°$)
$44{,}8\,\mu \leqslant \xi_{ex} \leqslant 49{,}6\,\mu$; $\xi_{ex} = (47{,}2 \pm 2{,}4)\,\mu$

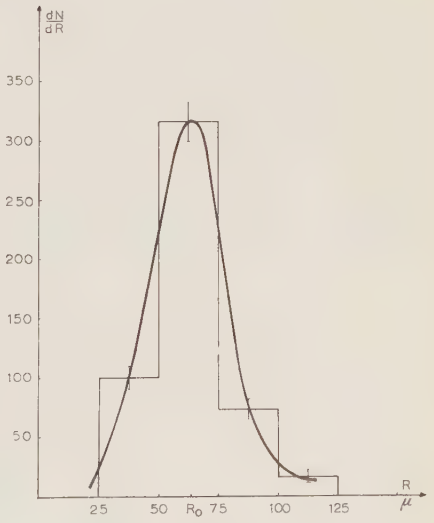


Fig. 2

Distribution des parcours R rapportés à KCl des protons de la réaction $K^{40}(n_{th}, p)A^{40}$.
$N_t = 508$ traces $R_0 =$
$(63 \pm 12)\,\mu \rightarrow E_p = (2{,}10 \pm 0{,}22)$ MeV

la perte d'énergie dans les 3 μ de collodion sous 20° d'inclinaison. La figure représente un essai parmi plusieurs constructions avec des largeurs de classes différentes fournissant toutes des valeurs extrapolées voisines. La valeur moyenne obtenue pour l'énergie par ce procédé est la suivante: $E_p = (2{,}25 \pm 0{,}07)$ MeV.

Le second histogramme tient compte du parcours dans la couche-cible. La largeur de la distribution est augmentée artificiellement par la correction apportée: nous avons admis que toutes les traces prenaient naissance dans le plan situé à mi-épaisseur. Cette façon de faire doit laisser la valeur moyenne sensiblement inaltérée mais étale forcément la distribution de part et d'autre. De plus, le résultat dépend directement de l'épaisseur de la cible et du pouvoir de freinage adopté pour le KCl. En variant la largeur de classe on obtient des courbes dont le maximum varie légèrement de position. Toutes ces courbes sont raisonnablement symétriques et le nombre de protons observés entre le seuil de discrimination de 0,94 MeV et 1,2 MeV reste inférieur à 3% du maximum. La fig. 2 représente un essai parmi d'autres.

La position moyenne des maxima ainsi obtenus correspond à une énergie $E_p = (2{,}09 \pm 0{,}24)$ MeV.

La moyenne pondérée de ces deux résultats fournit la valeur $E_p = (2{,}23 \pm 0{,}10)$ MeV ce qui est en bon accord avec l'énergie attendue $E_p = (2{,}18 \pm 0{,}01)$ MeV et constitue une vérification de la nature de la réaction observée. Nous concluons que les protons détectés forment un seul groupe correspondant à la création du noyau final dans son niveau fondamental. Le premier niveau excité de A^{40} de caractéristiques (2^+) se trouve à 1,46 MeV ce qui fournirait des protons de 0,76 MeV situés au-dessous du seuil d'observation. Nous admettrons que ce groupe, de toutes façons très difficile à détecter, contribue de façon négligeable à la réaction La discussion ci-dessous fournit des arguments en faveur de cette hypothèse

Discussion

Le modèle du noyau compound pour les réactions nucléaires, valable aux faibles énergies, prédit la relation simple:

$$\sigma(n, p)/\sigma(n, \gamma) = \Gamma_p/\Gamma_\gamma.$$

Le membre de gauche est fourni par l'expérience. Les tables BNL 325[4]) donnent pour K^{40} la valeur $\sigma_{abs} = (70 \pm 20)$b. Tenant compte de notre résultat pour $\sigma(n, p)$ on en déduit que $\sigma(n, \gamma) \simeq 66$b et $\sigma(n, p)/\sigma(n, \gamma) \simeq 4/66$.

La largeur partielle Γ_p peut s'écrire sous la forme

$$\Gamma_p = \frac{D^*}{2\pi} T_l.$$

On voit que le calcul de la transparence de barrière T_l et une valeur raisonnable de Γ_γ permettent une estimation de la distance moyenne entre niveaux de même spin et parité, D^*, pour le noyau composé K^{41} au voisinage de l'énergie d'excitation $E^* = 9{,}90$ MeV (valeur déduite des masses).

Dans notre cas où $E_p \gtrsim B$ (= hauteur de barrière de COULOMB), l'approximation W. K. B. permet un calcul suffisamment précis de T_l qui prend alors la forme

$$T_l \simeq P_l G_l \simeq 4 \sqrt{\frac{B_l(R) - E_p}{V_0}} \cdot G_l .$$

Le premier facteur P_l dépend faiblement du rayon nucléaire R par la hauteur totale de barrière (de COULOMB et centrifuge) $B_l(R)$. Pour le potentiel V_0 du proton à l'intérieur du noyau on prendra la valeur moyenne $V_0^{(n)} - 5/4\, B$ où $V_0^{(n)}$, la profondeur du puits pour les neutrons, est de l'ordre de 40 MeV pour l'énergie considérée E_p (= Q dans le système du centre de masse) voisine de 2 MeV.

Le facteur de GAMOW G_l pour le proton de moment cinétique l est assez sensible au choix du rayon R. Nous ferons le calcul pour deux valeurs raisonnables dans le domaine des estimations admises actuellement: $R = (0{,}7 + A^{1/3}) \cdot 1{,}2 \cdot 10^{-13}$ cm[1]) et $R = 1{,}30\, A^{1/3} \cdot 10^{-13}$ cm[5])[6]).

La conservation du moment angulaire total limite les valeurs possibles de l. Le spin de K^{40} vaut 4 et celui de A^{40} dans son état fondamental très certainement 0; le spin du niveau du noyau composé intervenant dans la réaction sera $J = 7/2$ ou $J = 9/2$ et les valeurs correspondantes de l sont $l = 3$ et 4 et $l = 4$ et 5 respectivement. Pour le niveau excité (2^+) de A^{40} les valeurs les plus faibles parmi les l possibles et qui pourraient conduire à un effet compétitif sont 1 et 2 resp. 2 et 3.

D'autre part si, comme on peut l'admettre, un seul niveau du compound est responsable de la capture du neutron, l'état final aura une parité bien définie, liée à celle du noyau initial et du noyau compound par les relations:

$\Pi_{K^{40}} = \Pi_C = (-1)^l\, \Pi_{A^{40}} = (-1)^l$ puisque ${}_{18}A^{40}$, noyau pair-pair, possède un niveau fondamental 0^+. Le cas du niveau excité (2^+) est soumis à la même condition.

Les résultats du calcul (pour le niveau fondamental de A^{40}) sont donnés dans le tableau suivant, fig. 3. Nous avons admis pour la largeur de radiation la valeur $\Gamma_\gamma = 0{,}2$ eV qui paraît raisonnable pour le domaine de masses considéré. (On sait d'ailleurs que Γ_γ conserve des valeurs très voisines pour tous les noyaux.)

$A = 40 \quad Z = 18$ $\Gamma_\gamma = 0{,}2$ eV		$l = 3$	$l = 4$	$l = 5$
$R = (0{,}7 + A^{1/3}) 1{,}2 \cdot 10^{-13}$	P	2,48	3,08	3,76
	G	$1{,}18 \cdot 10^{-4}$	$4{,}40 \cdot 10^{-6}$	$1{,}12 \cdot 10^{-7}$
	D*	260 eV	5650 eV	$1{,}8 \cdot 10^{5}$ eV
$R = 1{,}30\, A^{1/3} \cdot 10^{-13}$	P	2,82	3,50	4,17
	G	$9{,}35 \cdot 10^{-5}$	$1{,}80 \cdot 10^{-6}$	$3{,}10 \cdot 10^{-8}$
	D*	290 eV	12300 eV	$5{,}9 \cdot 10^{5}$ eV

Fig. 3

Une estimation grossière de l'espacement entre niveaux, D, est fournie par la formule statistique de Blatt et Weisskopf[7])

$$1/D = C \exp\left(2\sqrt{aE^*}\right)$$

avec pour $A \sim 40$ les valeurs $C \simeq 0{,}4$ (MeV)$^{-1}$ et $a \simeq 1$ (MeV)$^{-1}$. Ceci donne dans notre cas où $E^* = 9{,}90$ MeV le résultat:

$$D \simeq 5000 \text{ eV}$$

Newton[8]) a proposé une formule d'interpolation basée sur une adaptation plus complète aux données expérimentales et qui peut s'écrire sous la forme:

$$D = A^2 \left(2\,U + 9{,}6\sqrt{U/A}\right)^2 \exp\left(8{,}30 - 0{,}62\sqrt{AU}\right)$$

où D est en eV et $U = (E^* - \delta)$ en MeV; $\delta \simeq 11/\sqrt{A}$ MeV représente l'énergie de paire qui se soustrait de E^* pour un noyau impair-pair comme K^{41}. Dans cette formule nous avons supprimé un facteur de spin $(2J+1)^{-1}$ dont l'utilisation est contestable[8]). On trouve ainsi:

$$D \simeq 35000 \text{ eV}$$

Considérant maintenant la condition de parité, on sait que celle de K^{40} à l'état fondamental est admise comme impaire sur la base de la transition β^- menant au niveau 0^+ de Ca^{40} ($\Delta I = 4$, yes). La prédiction $\Pi_{K^{40}} = -1$ est aussi conforme au modèle en couches qui prévoit pour ${}_{19}K^{40}_{21}$ la configuration $(d_{3/2})^{-1}\,(f_{7/2})^1$.

Dans ces conditions $l = 4$ serait exclus.

L'examen du tableau fig. 3 rend très peu probable la valeur $l = 3$ pour laquelle D^* (qui devrait être $\gtrsim D$) est nettement trop faible et ceci pour les deux choix du rayon R.

Le résultat $D^* = 1{,}8 \cdot 10^5$ eV pour $l = 5$ (correspondant à $J = 9/2$) apparaît mieux compatible avec un espacement moyen de l'ordre de 5000 à 35000 eV, bien que le rapport $(D^*/D) \sim 5$ à 36 semble considérable.

Si l'on considère maintenant le cas du niveau excité (2^+) de A^{40}, on devra tenir compte des valeurs $l = 1$ pour l'état $J = 7/2$ du compound et $l = 3$ pour l'état $J = 9/2$. Le calcul de la transparence de barrière montre qu'une contribution comparable à celle du niveau fondamental n'intervient que pour $l = 1$. Si l'on exclut cette possibilité correspondant à $J = 7/2$, sur la base des considérations précédentes, la participation à la réaction ne se ferait que par $l = 3$. Dans ce cas le calcul montre que les protons de 0,76 MeV ne représentent que quelques % du groupe principal.

Nos conclusions provisoires seront donc que la réaction $K^{40}(n_{th}, p)A^{40}$ se fait par l'intermédiaire d'un niveau du noyau composé K^{41} de spin $J = 9/2$ et de parité *impaire*.

Cette recherche a bénéficié de l'appui financier de la Commission Suisse de l'Energie Atomique. Nous tenons à remercier Mmes Boutellier et Gros de leur travail consciencieux d'exploration de plaques.

Bibliographie

[1]) H. A. Bethe et P. Morrison, Elementary Nuclear Theory (Wiley 1956).
[2]) A. McNair, R. N. Glover et H. W. Wilson, Phil. Mag. *1*, 199 (1956).
[3]) H. Berthet et J. Rossel, Helv. Phys. Acta *28*, 265 (1955).
[4]) D. G. Hughes et J. A. Harvey, Neutron Cross Section BNL 325 (1955).
[5]) K. K. Seth, Rev. Mod. Phys. *30*, 442 (1958).
[6]) S. Fernbach, Rev. Mod, Phys. *30*, 414 (1958).
[7]) J. M. Blatt et V. F. Weisskopf, Theoretical Nuclear Physics (Wiley 1952), p. 371.
[8]) T. D. Newton, Canad. J. Phys. *34*, 804 (1956).

Einfluss der Lösungsmittel auf die chemische Verschiebung der OH-Gruppe im Kernresonanzspektrum von Phenolen

von **I. Gränacher**
Physikalische Anstalt der Universität Basel

(5. XII. 1958)

Zusammenfassung. Es wird die chemische Verschiebung der OH-Protonenresonanzlinie von Phenol, *p*-Chlorphenol und *o*-Chlorphenol in verschiedenen Lösungsmitteln untersucht. In Lösungsmitteln, die gute Protonenacceptoren sind, verschiebt sich die Linie nach kleinerem Feld, in den übrigen verschiebt sie sich nach grösserem Feld. Die Aktivierungsenergie des Protonenaustausches zwischen Phenol und Methanol wurde gemessen, sie beträgt $E_a = 5 \pm 1$ kcal/Mol.

Die chemische Verschiebung der OH-Linie von aliphatischen Alkoholen[1)2)3)] und organischen Säuren[4)] in verschiedenen Lösungsmitteln, z. B. in Kohlenwasserstoffen, wurde schon von verschiedenen Autoren untersucht. Es wurde festgestellt, dass sich in Alkohol die OH-Resonanz mit zunehmender Verdünnung stets nach höherem Feld verschiebt, was einem Aufbrechen der intermolekularen Wasserstoffbrücken entspricht.

Hier soll gezeigt werden, wie das Verhalten der OH-Linie des gelösten Phenols, infolge seines sauren Charakters, von demjenigen der aliphatischen Alkohole abweicht.

Nach Fig. 1 lassen sich 3 Gruppen von chemischen Verschiebungen, als Funktion der Phenolkonzentration, unterscheiden. Die erste zeigt eine deutliche Verschiebung nach kleinerem Feld, die zweite eine schwache und die dritte eine starke Verschiebung nach höherem Feld.

Alle Lösungsmittel der 1. Gruppe sind gute Protonenacceptoren, mit denen Phenol, das ein guter Protonendonator ist, ausgesprochene Wasserstoffbrücken bildet. Die chem. Verschiebung nach kleinerem Feld bedeutet eine Abnahme der Ladungsdichte in der Umgebung des OH-Protons, d. h. es bildet sich eine Wasserstoffbrücke, die stärker ist als diejenige zwischen den Phenolmolekülen unter sich. Die Lösungsmittel der 2. Gruppe sind alle unfähig, mit Phenol eine Wasserstoffkoordination einzugehen. In einem solchen Milieu zeigt die OH-Linie die bei Alkoholen beobachtete Verschiebung[1)2)3)], die allgemein als eine Folge der Auflösung der intermolekularen Wasserstoffbrücken zwischen den Alkoholmolekülen gedeutet wird. Mit Erwärmen über 100° C kann die OH-

Linie allerdings noch bis zu + 20 Hz geschoben werden. Das bedeutet, dass bei einer Molkonzentration von 0,05 immer noch ein Teil des Phenols in polymerer Form vorhanden ist.

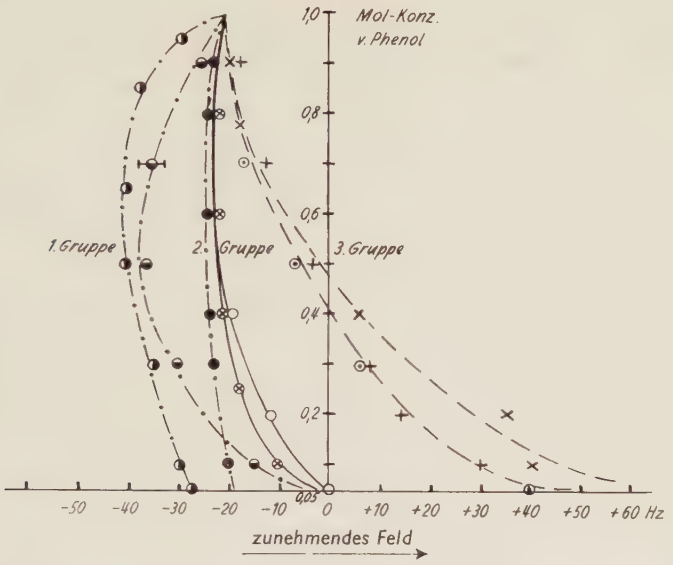


Fig. 1

Chemische Verschiebung der OH-Linie von reinstem Phenol in 9 verschiedenen Lösungsmitteln bei 23° C. Als Nullpunkt wurde die Lage der Benzollinie gewählt. (Die Radiofrequenz beträgt 34,2 MHz.)

- ◑ Tetrahydrofuran
- ⊖ Äthyläther
- ● Aceton, Äthylacetat
- ⊗ Cyclohexan
- ○ Schwefelkohlenstoff
- ⊙ Thiophen
- \+ Chlorbenzol
- × Benzol

Messungen im Infraroten[5]) über die Verschiebung der OH-Bande stimmen mit den hier beschriebenen Untersuchungen sehr gut überein. Bei allen Lösungsmitteln der 1. Gruppe ist für die OH-Schwingung die Frequenzverschiebung gegenüber der Gasphase $\Delta\nu > 190$ cm $^{-1}$, was das Vorhandensein starker Wasserstoffbrücken bedeutet. Für alle Lösungsmittel der 2. Gruppe ist $\Delta\nu < 45\ \mathrm{cm}^{-1}$.

Für die Lösungsmittel der Gruppe 3 beträgt im Infraroten die Frequenzverschiebung bedeutend weniger als in der 1. Gruppe, nämlich $70\ \mathrm{cm}^{-1} < \Delta\nu < 100\ \mathrm{cm}^{-1}$; sie ist jedoch immer noch so gross, dass man eine Assoziation zwischen Lösungsmittel und Phenol annehmen muss. Vermutlich bildet der Wasserstoff der OH-Gruppe in Phenol eine Brücke mit der diamagnetischen π-Elektronenwolke des Benzolringes, die eine abschirmende Wirkung auf das Proton ausübt[6]), was die chem. Verschiebung nach höheren Frequenzen erklären würde.

Analoge Messungen mit *p*-Chlorphenol zeigen das gleiche Resultat wie mit Phenol.

Die OH-Linie verschiebt sich hier allerdings in den Lösungsmitteln der 1. Gruppe noch weiter nach kleinerem Feld, z. B. in Äthyläther zeigt Phenol bei einer Molkonzentration von 0,5 eine Verschiebung von – 15 Hz gegenüber der Lage bei der Molkonzentration 1,0, *p*-Chlorphenol hingegen – 35 Hz. Für die anderen beiden Gruppen ist kein wesentlicher Unterschied gegenüber Phenol feststellbar. Diese grössere chem. Verschiebung ist eine Folge davon, dass *p*-Chlorphenol ein noch besserer Protonendonator ist als Phenol und somit noch ausgesprochenere Wasserstoffbrücken bildet, ähnlich der Bildung eines Oxoniumsalzes. Es sei darauf hingewiesen, dass eine echte Salzbildung, wie z. B. von Phenol mit Pyridin, die OH-Linie um – 130 Hz verschiebt[7]).

In *o*-Chlorphenol können nur noch 2 Kurvenscharen unterschieden werden, die in Fig. 2 dargestellt sind.

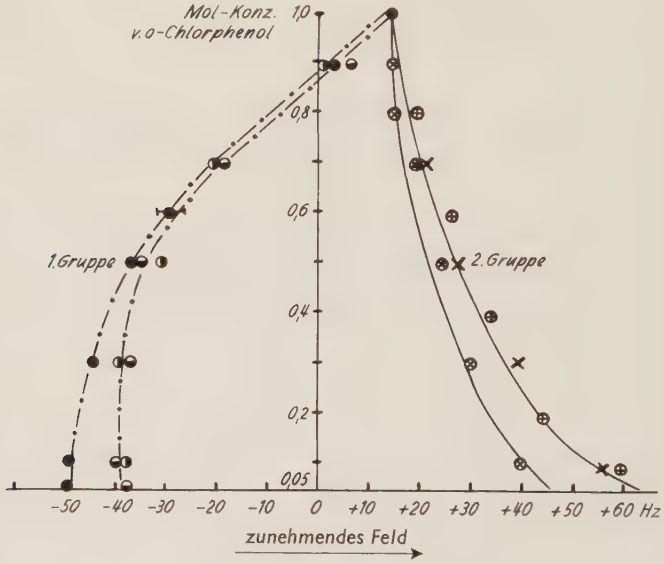


Fig. 2

Chemische Verschiebung der OH-Linie von o-Chlorphenol in 6 verschiedenen Lösungsmitteln

● Aceton ⊕ n-Hexan
◒ Äthyläther ⊗ Cyclohexan
◑ Dioxan × Benzol

Für alle Lösungsmittel der 1. Gruppe beschreibt die OH-Linie ungefähr die gleiche Kurve. Diese weist im Gegensatz zu Phenol und *p*-Chlorphenol bei der Konzentration 0,5 kein Maximum auf. Es scheint, dass

sich hier ein 1:1-Komplex zwischen *o*-Chlorphenol und dem Lösungsmittel bildet, der sich bei weiterem Verdünnen nicht mehr verändert. Beim *o*-Chlorphenol schwächt der in Ortho-Stellung eingeführte Substituent, infolge intramolekularer Assoziation, die Fähigkeit des OH-Wasserstoffs, eine Brücke mit dem aromatischen Ring des Lösungsmittels zu bilden, deshalb gibt es hier keine chem. Verschiebung, die der 3. Kurvenschar im Phenol und *p*-Chlorphenol entsprechen würde.

Zum Schluss sei darauf hingewiesen, dass der Protonenaustausch zwischen Phenolen und aliphatischen Alkoholen sich gut untersuchen lässt, da im Kernresonanzspektrum die Phenol-OH-Linie weit von der Alkohol-OH-Linie entfernt ist. Speziell *o*-Chlorphenol ist dazu sehr geeignet, denn der Austausch ist hier langsamer als in Phenol. Bei einer Temp. von $-70°$ C befinden sich die beiden OH-Resonanzen in einem Abstand von (185 ± 5) Hz und sind in einer Lösung vom Verhältnis 1 Teil *o*-Chlorphenol zu 2,5 Teilen Methanol noch beide scharf. Die Bestimmung der Aktivierungsenergie ergibt für diesen Austausch $E_a = 5 \pm 1$ kcal/Mol.

Weitere Messungen sind im Gange und sollen später in einer umfangreicheren Arbeit eingehend beschrieben werden.

Für die freundliche Unterstützung dieser Untersuchungen möchte ich Herrn Prof. Dr. P. Huber vielmals danken. Ebenso bin ich Herrn P. Diehl und Herrn Prof. H. Labhart für viele wertvolle Diskussionen und Hinweise dankbar.

Die vorliegende Arbeit wurde durch finanziellen Beitrag des Schweiz. Nationalfonds ermöglicht.

Literaturverzeichnis

[1]) A. D. Cohen und Reid, J. chem. Phys. *25*, 790 (1956).
[2]) P. Diehl, Helv. phys. Acta *30*, 91 (1957).
[3]) E. Becker, U. Liddel und J. N. Shoolery, J. of mol. Spektr. *2*, 1 (1958).
[4]) L. Reeves und W. G. Schneider, Trans. Faraday Soc. *54*, 314 (1958).
[5]) L. J. Bellamy, H. Hallam und R. Williams, Trans. Faraday Soc. *54*, 1120 (1958).
[6]) J. A. Pople und Schneider, Nature *178*, 1328 (1956).
[7]) Koichi Toyado, J. chem. Phys. *28*, 356 (1958).

HELVETICA PHYSICA ACTA

VOLUMEN XXXI

INHALTSVERZEICHNIS – TABLE DES MATIÈRES

Fasciculus I

15. II. 1958

G. Busch, F. Hulliger und R. Jaggi: Beziehungen zwischen den Koeffizienten der galvano- u. thermomagnetischen Transversaleffekte in Ferromagneten 3
H. Primas: Ein Modulationsverfahren für die Kernresonanzspektroskopie mit hoher Auflösung 17
H. Enz et J. Rossel: Sur la luminescence de CsI et NaI 25
Phrixos Théodoridès: L'onde de choc dans un fluide non-monoatomique 33
P. Diehl und J. Gränacher: Untersuchung von Bortrifluoridkomplexen mit Hilfe der kernmagnetischen Resonanz 43
Ch. Terreaux: Kernniveaus und Schalenmodell 45
Charles P. Enz: The Production and Absorption of Neutrinos in Beta-Decay Theory 69

Fasciculus II

2. V. 1958

R. Wagner und P. Huber: $(n, 2n)$-Reaktion an Be^9 für eine Neutronenenergie von 3,7 MeV 89
F. G. Houtermans und H. Oeschger: Proportionalzählrohr zur Messung schwacher Aktivitäten weicher β-Strahlung 117
J. M. Jauch: Theory of the scattering operator 127
L. Berger: Quantité d'information, et systèmes physiques 159
J. Rüfenacht: Présentation d'une méthode d'étude d'un asservissement de position commandé par un commutateur 167

Fasciculus III

2. VI. 1958

K. Alexander Müller: Paramagnetische Resonanz von Fe^{3+} in $SrTiO_3$ Einkristallen 173
V. Meyer und H. H. Staub: Alpha instabile angeregte Zustände des Be^8-Kerns 205
A. Lagerqvist und E. Miescher: Absorptionsspektrum des NO-Moleküls. Feinstruktur-Analyse der δ- und β-Banden und homogene Störung $C\,^2\Pi - B\,^2\Pi$ 221
Res Jost: Ein Beispiel zum Nukleon-Vertex 263

Fasciculus IV

15. VII. 1958

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft . . 273

Paul Gruner (1869–1957) 274

Adrien Jaquerod (1877–1957) 275

F. Kneubühl, T. Gäumann, T. Ginsburg und Hs. H. Günthard: Ein Rechenprogramm zur Auswertung der Rotationsspektren starrer Moleküle 276

J. Bonanomi, J. De Prins, J. Herrmann, P. Kartaschoff et J.-P. Blaser, M. Cavedon, R. Payot et W. Schuler: Comparaison entre déterminations de temps astronomiques et atomiques 278

J. Bonanomi, J. De Prins et J. Herrmann: Masers oscillant avec des cavités à modes dépendant de la longueur 282

J. Bonanomi, J. De Prins, J. Herrmann et P. Kartaschoff: Maser oscillant sur la ligne $J = 3, K = 2$ de NH_3 285

S. Gygax: Die In-Pb-Legierung und deren Verwendung in einem supraleitenden Verstärker 287

J. Müller und H. Rohrer: Die Volumenänderung in Vanadium beim Übergang zur Supraleitung 289

G. Busch und J. Müller: Supraleitung in Vanadium-Chrom-Legierungen 291

R. Jaggi und R. Sommerhalder: Messung der Eindringtiefe an supraleitenden Hohlkörpern 292

B. Lüthi und H. Rohrer: Bemerkungen zum Druckeffekt in Supraleitern 294

J. L. Olsen: Durchmesserabhängigkeit der magnetischen Widerstandsänderung in Indium 295

G. Busch, H. J. Stocker und O. Vogt: Magnetische Suszeptibilität des flüssigen Ge 297

G. Busch, H. J. Stocker und O. Vogt: Die magnetische Suszeptibilität von Si-Ge-Mischkristallen 299

G. Busch und F. Hulliger: Halbleitende Verbindungen mit Übergangselementen 301

K. Clusius und U. Piesbergen: Die Atom- und Elektronenwärme des Urans zwischen 10° K und Zimmertemperatur 302

S. Methfessel: Messung der Energieverluste sehr langsamer Elektronen in Alkalimetallen mit Hilfe des äusseren lichtelektrischen Effektes . . 303

R. Nitsche: Growth of Ferroelectric Crystals of the Type $(Glycine)_3H_2AB_4$ 306

E. Fatuzzo: Some Physical Properties of Tri Glycine Sulfate and its Isomorphs 309

W. Ruppel: Space-Charge-Limited Currents in ZnS Single Crystals . . . 311

Y. Eisenberg, W. Koch, E. Lohrmann, M. Nikolič, M. Schneeberger und H. Winzeler: Wechselwirkungen von K^--Mesonen 314

Y. Eisenberg, W. Koch, E. Lohrmann, M. Nikolič, M. Schneeberger et H. Winzeler: Analyse de désintégration de mésons K négatifs . . . 314

M. Gribi, F. Heinrich, H. Loeliger, J. M. Pictet, A. Rytz, H. Wäffler und M. Walter: Erzeugung harter Schauer aus Lithium durch geladene Partikel der kosmischen Strahlung 315

M. Brüllmann, H.-J. Gerber, D. Meier: Polarisation der an Deuteronen gestreuten Neutronen 318

B. Lobkowicz, H. Guhl und P. Marmier: (p, n)-Reaktion an Mangan . 320
J. Geiss, H. Oeschger und P. Signer: He^3-H^3-Messungen an einem Steinmeteoriten 322
J. Geiss, B. Hirt, P. Signer, W. Herr und E. Merz: Isotopenanalyse des Osmiums aus dem Meteoriten Henbury 324
E. Brun, J. Oeser und H. H. Staub: Verwendung der Seitenbandtechnik zur Messung magnetischer Kernrelaxationszeiten 325
P. Debrunner, W. Kündig, J. Sunier und P. Scherrer: Messungen der g-Faktoren von paramagnetischen Substanzen mit Hilfe der Richtungskorrelation 326
R. Balzer, H. Knoepfel, P. Stoll und W. Wölfli: Ein Paarspektrometer zur Ausmessung von Gammaquanten bis 26 MeV 328
H. Knoepfel, Ch. Menoud und P. Stoll: Betriebsbedingungen und Möglichkeiten der Thermalisierung im Versuchskanal des Swimmingpool-Reaktors 330
J. Brunner, J. Halter und P. Scherrer: Kernspektroskopische Untersuchungen der radioaktiven Isotope Hg–Au^{195} und Hg–Au^{193} 335
Lalit Kumar Pandit: Electromagnetic Properties of the Nucleon and Relativistic Electron-Proton Scattering According to Meson Theory 379
H. Primas und Hs. H. Günthard: Eine Methode zur direkten Berechnung des Spektrums der von quantenmechanischen Systemen absorbierten bzw. emittierten elektromagnetischen Strahlung 413

Fasciculus V

1. IX. 1958

M. Martin, P. Marmier und J. de Boer: Coulomb-Anregung einiger deformierter u-g-Kerne 435
M. Martin, R. Szostak und P. Marmier: Elektromagnetisch gestörte Gammawinkelverteilungen des 197 keV-Überganges im F^{19} 481
Ch. J. Frei, H. H. Staub und H. Winkler: Der Wirkungsquerschnitt für Paarerzeugung durch 6,3 MeV γ-Quanten im Coulombfeld des Elektrons 491
Dominique Roux: Interactions indirectes entre spins nucléaires dans les champs faibles 511
P. J. Frank: Couplages indirects des spins nucléaires dans les molécules comportantes des liaisons F-P et H-P 542
R. Weill, C. Joseph, M. Gailloud et Ph. Rosselet: Lacunomètre: appareil de mesure semi-automatique des longueurs moyennes et du spectre des longueurs de lacunes, dans les émulsions nucléaires 546

Fasciculus VI

31. X. 1958

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft . . 551
E. Lüscher: Un nouveau monochromateur dans les domaines de Schumann et Lyman 551
K. Wieland: Erfahrungen mit dem Gitter-Spektrometer von Leeds & Northrup bei Absorptionsmessungen an Gasen 555
P. Erdös: Zweispiegel-Anastigmat mit konzentrischen Kugelflächen . . 556
Albert L. Perrier: Energétique générale du courant de Hall 558

G. Busch, H. J. Stocker und O. Vogt: Magnetische Suszeptibilität von Ladungsträgern in Ge-Si-Mischkristallen 565
G. Busch et P. Junod: Relations entre la structure cristalline et les propriétés électriques du sulfure d'argent Ag_2S 567
L. Berger: Sur la conductivité calorifique des métaux ferromagnétiques 570
P. Koch: Ein transistorisiertes Mehrkanal-System zur Registrierung von Vibrationen auf Magnetband 572
E. Baldinger, P. Santschi und P. Wehrli: Ein dekadischer Transistoruntersetzer mit hohem Auflösungsvermögen 575
R. M. Berthier: Etude sur la théorie de l'électron 576
J. de Boer, M. Martin und P. Marmier: Gamma-Winkelverteilungen bei Coulomb-Anregung von einigen *u-g*-Kernen 578
H.-J. Gerber, M. Brüllmann und D. Meier: Streuung von 3,27-MeV-Neutronen an Deuteronen 580
Cl. Bovet, E. Jeannet, J. Rossel et E. Vaucher: Interaction de neutrons de 300 MeV avec Cu, Ag et Pt 583
M. Fierz: Die Anzahl der mit Hilfe von 21 Dirac'schen Spinoren zu bildenden Invarianten 587
A. Hofmann und P. Stoll: Untersuchungen von (γ, pn)- und (γ, d)-Reaktionen mit Gammaenergien bis zu 32 MeV 591
F. Widder und P. Huber: Druckabhängigkeit der Sättigungsladung von Po-α-Teilchen in CO_2, A-CO_2- und A-CH_4-Mischungen 601
Walter J. Merz: The Photovoltaic Effect in Striated ZnS Single Crystals . . 625
B. N. Bhar: On Pressure Dependence of Proton Magnetic Resonance Shift . . 636
R. Jaggi, J. Müller und R. Sommerhalder: Kritische Feldstärke supraleitender Hohlzylinder im transversalen Magnetfeld 637

Fasciculus VII

30. XII. 1958

R. Weill: Production directe de paires d'électrons par des électrons de grande énergie 641
J. M. Jauch: Theory of the Scattering Operator H. Multichannel Scattering . 661
P. Diehl: Kernmagnetische Resonanzstudien der Bortrifluoridkomplexbildung 685
J. L. Olsen: Magnetoresistance and Size Effects in Indium at Low Temperatures 713
J. Rossel et J. Weber: Sur la réaction K^{40} (n_{th}, p) A^{40} 727
I. Gränacher: Einfluss der Lösungsmittel auf die chemische Verschiebung der OH-Gruppe im Kernresonanzspektrum von Phenolen 734
Inhaltsverzeichnis 738
Autorenregister 742

HELVETICA PHYSICA ACTA

VOLUMEN XXXI

AUTORENREGISTER – TABLE DES AUTEURS

B

Baldinger, E., Santschi, P., und Wehrli, P. 575
Balzer, R., Knoepfel, H., Stoll, P., und Wölfli, W. 328
Berger, L. 159
Berger, L. 570
Bericht über die Tagung der Schweiz. Physikalischen Gesellschaft 273
Berthier, R. M. 576
Bhar, B. N. 636
Blaser, J.-P.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann, Kartaschoff, Blaser, Cavedon, Payot et Schuler 278
de Boer, J.: siehe Martin, Marmier und de Boer 435
de Boer, J., Martin, M., und Marmier, P. 578
Bonanomi, J., De Prins, J., Herrmann, J., Kartaschoff, P., Blaser, J.-P., Cavedon, M., Payot, R., et Schuler, W. 278
Bonanomi, J., De Prins, J., et Herrmann, J. 282
Bonanomi, J., De Prins, J., Herrmann, J., et Kartaschoff, P. 285
Bovet, Cl., Jeannet, E., Rossel, J., et Vaucher, E. 583
Brüllmann, M., Gerber, H.-J., und Meier, D. 318
Brüllmann, M.: siehe Gerber, Brüllmann und Meier 580
Brun, E., Oeser, J., und Staub, H. H. 325
Brunner, J., Halter, J., und Scherrer, P. 335
Busch, G., Hulliger, F., und Jaggi, R. 3
Busch, G., und Müller, J. 291
Busch, G., Stocker, H. J., und Vogt, O. 297
Busch, G., Stocker, H. J., und Vogt, O. 299
Busch, G., und Hulliger, F. 301
Busch, G., Stocker, H. J., und Vogt, O. 565
Busch, G., et Junod, P. 567

C

Cavedon, M.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann, Kartaschoff, Blaser, Cavedon, Payot et Schuler 278
Clusius, K., und Piesbergen, U. 302

D

Debrunner, P., Kündig, W., Sunier, J., und Scherrer, P. 326
Diehl, P., und Gränacher, J. 43
Diehl, P. 685

E

Eisenberg, Y., Koch, W., Lohrmann, E., Nikolič, M., Schneeberger, M., und Winzeler, H. 314
Eisenberg, Y., Koch, W., Lohrmann, E., Nikolič, M., Schneeberger, M., et Winzeler, H. 314
Enz, H., et Rossel, J. 25
Enz, Ch. P. 69
Erdös, P. 556

F

Fatuzzo, E. 309
Fierz, M. 587
Frank, P. J. 542
Frei, Ch. J., Staub, H. H., und Winkler, H. 491

G

Gailloud, M.: voir Weill, Joseph, Gailloud et Rosselet 546
Gäumann, T.: siehe Kneubühl, Gäumann, Ginsburg und Günthard 276
Geiss, J., Oeschger, H., und Signer, P. 322
Geiss, J., Hirt, P., Signer, P., Herr, W., und Merz, E. 324
Gerber, H.-J.: siehe Brüllmann, Gerber und Meier 318
Gerber, H.-J., Brüllmann, M., und Meier, D. 580
Ginsburg, T.: siehe Kneubühl, Gäumann, Ginsburg und Günthard 276
Gränacher, J.: siehe Diehl und Gränacher 43
Gränacher, I. 734
Gribi, M., Heinrich, F., Loeliger, H., Pictet, J. M., Rytz, A., Wäffler, H., und Walter, M. 315
Gruner, P. 274
Guhl, H.: siehe Lobkowicz, Guhl und Marmier 320
Günthard, Hs. H.: siehe Primas und Günthard 413
Gygax, S. 287

H

Halter, J.: siehe Brunner, Halter und Scherrer 335
Heinrich, F.: siehe Gribi, Heinrich, Loeliger, Pictet, Rytz, Wäffler und Walter 315
Herr, W.: siehe Geiss, Hirt, Ligner, Herr und Merz 324
Herrmann, J.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann, Kartaschoff, Blaser, Cavedon, Payot et Schuler 278
Herrmann, J.: voir Bonanomi, De Prins et Herrmann 282
Herrmann, J.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann et Kartaschoff 285
Hirt, P.: siehe Geiss, Hirt, Signer, Herr und Merz 324
Hofmann, A., und Stoll, P. 591
Houtermans, F. G., und Oeschger, H. 117
Huber, P.: siehe Wagner und Huber 89
Huber, P.: siehe Widder und Huber 601
Hulliger, F.: siehe Busch, Hulliger und Jaggi 3
Hulliger, F.: siehe Busch und Hulliger 301

J

Jaggi, R.: siehe Busch, Hulliger und Jaggi 3
Jaggi, R., und Sommerhalder, R. 292
Jaggi, R., Müller, J., und Sommerhalder, R. 637
Jaquerod, A. 275
Jauch, J. M. 127
Jauch, J. M. 661
Jeannet, E.: voir Bovet, Jeannet, Rossel et Vaucher 583
Joseph, C.: voir Weill, Joseph, Gailloud et Rosselet 546
Jost, R. 263
Junod, P.: voir Busch et Junod 567

K

Kartaschoff, P.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann, Kartaschoff, Blaser, Cavedon, Payot et Schuler 278
Kartaschoff, P.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann et Kartaschoff 285
Kneubühl, F., Gäumann, T., Ginsburg, T., und Günthard, Hs. H. 276
Knoepfel, H.: siehe Balzer, Knoepfel, Stoll und Wölfli 328
Knoepfel, H., Menoud, Ch., und Stoll, P. 330
Koch, P. 572

Koch, W.: siehe Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger und Winzeler 314
Koch, W.: voir Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger et Winzeler 314
Kündig, W.: siehe Debrunner, Kündig, Sunier und Scherrer 326

L

Lagerqvist, A., und Miescher, E. 221
Lobkowicz, B., Guhl, H., und Marmier, P. 320
Loeliger, H.: siehe Gribi, Heinrich, Loeliger, Pictet, Rytz, Wäffler und Walter 315
Lohrmann, E.: siehe Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Scehneberger und Winzeler 314
Lohrmann, E.: voir Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger et Winzeler 314
Lüscher, E. 551
Lüthi, B., und Rohrer, H. 294

M

Marmier, P.: siehe Lobkowicz, Guhl und Marmier 320
Marmier, P.: siehe Martin, Marmier und de Boer 435
Marmier, P.: siehe Martin, Szostak und Marmier 481
Marmier, P.: siehe de Boer, Martin und Marmier 578
Martin, M., Marmier, P., und de Boer, J. 435
Martin, M., Szostak, R., und Marmier, P. 481
Martin, M.: siehe de Boer, Martin und Marmier 578
Meier, D.: siehe Brüllmann, Gerber und Meier 318
Meier, D.: siehe Gerber, Brüllmann und Meier 580
Menoud, Ch.: siehe Knoepfel, Menoud und Stoll 330
Merz, E.: siehe Geiss, Hirt, Signer, Herr und Merz 324
Merz, W. J. 625
Methfessel, S. 303
Meyer, V., und Staub, H. H. 205
Miescher, E.: siehe Lagerqvist und Miescher 221
Müller, J., und Rohrer, H. 289
Müller, J.: siehe Busch und Müller 291
Müller, J.: siehe Jaggi, Müller und Sommerhalder 637
Müller, R. A. 173

N

Nietsche, R. 306
Nikolič, M.: voir Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger et Winzeler 314
Nikolič, M.: siehe Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger und Winzeler 314

O

Oeschger, H.: siehe Houtermans und Oeschger 117
Oeschger, H.: siehe Geiss, Oeschger und Signer 322
Oeser, J.: siehe Brun, Oeser und Staub 325
Olsen, J. L. 295
Olsen, J. L. 713

P

Pandit, L. K. 379
Payot, R.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann, Kartaschoff, Blaser, Cavedon, Payot et Schuler 278
Perrier, A. L. 558
Pictet, J. M.: siehe Gribi, Heinrich, Loeliger, Pictet, Rytz, Wäffler und Walter 315
Piesbergen, U.: siehe Clusius und Piesbergen 302
Primas, H. 17
Primas, H., und Günthard, Hs. H. 413
De Prins, J.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann, Kartaschoff, Blaser, Cavedon, Payot et Schuler 278

De Prins, J.: voir Bonanomi, De Prins et Herrmann 282
De Prins, J.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann et Kartaschoff 285

R

Rohrer, H.: siehe Müller und Rohrer 289
Rohrer, H.: siehe Lüthi und Rohrer 294
Rossel, J.: voir Enz et Rossel 25
Rossel, J.: voir Bovet, Jeannet, Rossel et Vaucher 583
Rossel, J., et Weber, J. 727
Rosselet, Ph.: voir Weill, Joseph, Gailloud et Rosselet 546
Roux, D. 511
Rüfenacht, J. 167
Ruppel, W. 311
Rytz, A.: siehe Gribi, Heinrich, Loeliger, Pictet, Rytz, Wäffler und Walter 315

S

Santschi, P.: siehe Baldinger, Santschi und Wehrli 575
Scherrer, P.: siehe Debrunner, Kündig, Sunier und Scherrer 326
Scherrer, P.: siehe Brunner, Halter und Scherrer 335
Schneeberger, M.: siehe Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger und Winzeler 314
Schneeberger, M.: voir Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger et Winzeler 314
Schuler, W.: voir Bonanomi, De Prins, Herrmann, Kartaschoff, Blaser, Cavedon, Payot et Schuler 278
Signer, P.: siehe Geiss, Oeschger und Signer 322
Signer, P.: siehe Geiss, Hirt, Signer, Herr und Merz 324
Sommerhalder, R.: siehe Jaggi und Sommerhalder 292
Sommerhalder, R.: siehe Jaggi, Müller und Sommerhalder 637
Staub, H. H.: siehe Meyer und Staub 205
Staub, H. H.: siehe Brun, Oeser und Staub 325
Staub, H. H.: siehe Frei, Staub und Winkler 491
Stocker, H. J.: siehe Busch, Stocker und Vogt 297
Stocker, H. J.: siehe Busch, Stocker und Vogt 299
Stocker, H. J.: siehe Busch, Stocker und Vogt 565
Stoll, P.: siehe Balzer, Knoepfel, Stoll und Wölfli 328
Stoll, P.: siehe Knoepfel, Menoud und Stoll 330
Stoll, P.: siehe Hofmann und Stoll 591
Sunier, J.: siehe Debrunner, Kündig, Sunier und Scherrer 326
Szostak, R.: siehe Martin, Szostak und Marmier 481

T

Terreaux, Ch. 45
Théodoridès, Ph. 33

V

Vaucher, E.: voir Bovet, Jeannet, Rossel et Vaucher 583
Vogt, O.: siehe Busch, Stocker und Vogt 297
Vogt, O.: siehe Busch, Stocker und Vogt 299
Vogt, O.: siehe Busch, Stocker und Vogt 565

W

Wäffler, H.: siehe Gribi, Heinrich, Loeliger, Pictet, Rytz, Wäffler und Walter 315
Wagner, R., und Huber, P. 89
Walter, M.: siehe Gribi, Heinrich, Loeliger, Pictet, Rytz, Wäffler und Walter 315
Weber, J.: voir Rossel et Weber 727
Wehrli, P.: siehe Baldinger, Santschi und Wehrli 575

Weill, R., Joseph, C., Gailloud, M., et Rosselet, Ph. 546
Weill, R. 641
Widder, F., und Huber, P. 601
Wieland, K. 555
Winkler, H.: siehe Frei, Staub und Winkler 491
Winzeler, H.: siehe Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger und Winzeler 314
Winzeler, H.: voir Eisenberg, Koch, Lohrmann, Nikolič, Schneeberger et Winzeler 314
Wölfli, W.: siehe Balzer, Knoepfel, Stoll und Wölfli 328